

Ein neues Kern-Isomer von T = 3,9 min beim Selen

Von A. Flammersfeld und Chr. Ythier

Max-Planck-Institut für Chemie, Mainz

(Z. Naturforsch. 5a, 401 [1950]; eingeg. am 26. Juni 1950)

Selen, das mit Neutronen bestrahlt wird, zeigt ein kompliziertes radioaktives Verhalten wegen der Vielzahl der auftretenden Halbwertszeiten. Außer den länger bekannten Aktivitäten von ^{75}Se (127 d), ^{81}Se (18 min), $^{81}\text{Se}^*$ (57 min) und ^{83}Se (30 min) wurden neuerdings von Arnold und Sugarman¹ zwei weitere, durch langsame Neutronen erhältliche Aktivitäten (^{83}Se (1,1 min) und $^{77}\text{Se}^*$ (17,5 sec) aufgefunden.

In der vorliegenden Arbeit sollte dieses Isomer näher untersucht werden, wozu elementares Selen in dünner Schicht (5 mg/cm²) mit Be+D- und Li+D-Neutronen unserer Hochspannungsanlage ($E_D = 1,4$ MeV) bestrahlt und in einem Schleusenzählrohr mit besonders dünnem Fenster (0,2 μ Zaponlack) gemessen wurde.

Im Laufe der Untersuchung stellte sich heraus, daß eine weitere bisher unbekannte Aktivität durch Neutronen beim Selen entsteht, die eine Halbwertszeit von $T = 3,9 \pm 0,1$ min besitzt und eine sehr weiche Strahlung aussendet.

Die Erzeugung des 3,9-min-Körpers ist sowohl durch unverlangsamte wie durch verlangsamte Be+D-Neutronen möglich, wobei im letzteren Falle eine erhebliche Verstärkung stattfindet. Das bedeutet also, daß er hierbei im wesentlichen durch (n, γ)-Prozeß entsteht. Die Tatsache, daß er auch durch unverlangsamte Be+D-Neutronen gebildet wird, bedeutet nicht, daß auch ein (n,n)-Prozeß stattfinden muß, da auch die 57-min- und 18-min-Periode mit unverlangsamten Be+D-Neutronen sehr stark werden, obwohl sie sicher nur durch (n, γ)-Prozeß entstehen. Die Intensität des 3,9-min-Körpers ist derart, daß er bei kurzer Bestrahlung (z. B. 3 min) mit unverlangsamten Be+D-Neutronen nach Abklingung der sehr starken 17,5-sec-Aktivität etwa 3-mal so intensiv ist wie die 18-min- und 57-min-Körper. Noch deutlicher tritt die neue Aktivität bei Bestrahlung des Selsens mit unverlangsamten Li+D-Neutronen auf. Ebenso wie die 57-min-Aktivität wird sie hier offenbar durch einen (n,2n)-Prozeß gebildet, während der 18-min-Körper im Einklang mit den Angaben in der Literatur nicht merkbar wird.

Die Strahlung des 3,9-min-Körpers ist in Aluminium sehr stark absorbierbar, sie besteht aus Elektronen; γ -Strahlen sind keine vorhanden. Die Reichweite der Elektronen ist nur mäßig genau bestimmbar, weil nach Absorption der 3,9-min-Komponente noch zu viel andere Aktivitäten vorhanden sind. Sie beträgt etwa 9,5 mg/cm² Al entsprechend einer Energie von $0,09 \pm 0,01$ MeV².

Es wurden drei reine Selenproben verschiedener Herkunft untersucht, die alle die 3,9-min-Aktivität in derselben Intensität ergaben. Hieraus und der mit den übrigen Se-Aktivitäten vergleichbaren Intensität muß geschlossen werden, daß es sich nicht um eine Verunreinigung handelt. Niob, das eine ähnliche Aktivität ergibt ($^{94}\text{Nb}^*$,

$T = 6,6$ min, $E_\beta = 0,041$ MeV) wurde durch gleichzeitige Bestrahlung von Se- und Nb-Präparaten ausgeschlossen; es zeigte sich, daß der Wirkungsquerschnitt von Nb mindestens um den Faktor 100 zu klein ist, um als Verunreinigung im Selen die neue Aktivität vortäuschen zu können. Andere Elemente, die ähnliche Halbwertszeiten mit derart geringer Energie ergeben, sind nicht bekannt, so daß auch aus diesem Grund keine Möglichkeit besteht, zur Erklärung eine Verunreinigung anzunehmen.

Bei der 3,9-min-Aktivität kann es sich offenbar nur um einen isomeren Zustand eines Selen-Isotops handeln, der durch Isomeren-Übergang in den Grundzustand übergeht. Die Anregungsenergie von 0,090 MeV ist mit der Halbwertszeit dann durchaus verträglich. Die Zuordnung zu einer bestimmten Massenzahl ist noch nicht möglich. Die Tatsache, daß sowohl (n, γ)- wie (n,2n)-Prozesse die 3,9-min-Aktivität ergeben, macht eine Zuordnung zu $^{81}\text{Se}^*$, $^{77}\text{Se}^*$ oder zu $^{79}\text{Se}^*$ möglich.

In den ersten Fällen handelte es sich also jeweils um ein zweites Isomer zu ^{81}Se bzw. ^{77}Se , im letzteren Fall aber um ein Isomer zum noch unbekannten ^{79}Se , das vermutlich sehr langlebig ist.

Bemerkenswert ist noch, daß die Auffindung der 3,9-min-Aktivität vielleicht wichtig für einen Teil der Diskrepanzen bei den Angaben für die Halbwertszeit des 18-min-Körpers ist; möglicherweise ist der neueste Wert³ von $T = 13,6$ min durch eine geringe Beimischung zustande gekommen. Bei genügender Vorschaltung von Absorptionsfolien wurde hier immer $T = 18 \pm 1$ min gemessen.

Ferner wurde noch die 17,5-sec-Aktivität des $^{77}\text{Se}^*$ untersucht, die bei allen Bestrahlungsarten sehr intensiv wird. Die Elektronen, die bei dem isomeren Übergang ausgesandt werden, haben eine Reichweite von 30 mg/cm² Al entspr. einer Energie von 0,165 MeV. Dieser Wert stimmt befriedigend überein mit einer Bestimmung von Gideon und Mitarbb.⁴, die 0,135 MeV fanden, und der Energie der nicht umgewandelten γ -Strahlung von $\approx 0,150$ MeV¹. Die Halbwertszeit wurde neu bestimmt zu $17,4 \pm 0,15$ sec.

Die von Arnold und Sugarman gefundene Halbwertszeit von $T = 1,1$ min des (^{83}Se) (große β -Energie, Nachweis hinter Al-Absorber zur Schwächung der weniger energiereichen anderen Aktivitäten) konnte ebenfalls bestätigt werden.

³ H. Wäffler u. O. Hirzel, *Helv. physica Acta* **21**, 200 [1948].

⁴ D. M. Gideon, W. C. Miller u. B. Waldman, *Physic. Rev.* **75**, 329 (abs. A8) [1949].

Über die Zuordnung des 1,1-Stunden-Bleis

Von Klaus Geiger

Max-Planck-Institut für Chemie, Mainz

(Z. Naturforsch. 5a, 401—403 [1950]; eingeg. am 12. Juni 1950)

Bei Bestrahlung von Blei mit Neutronen fanden de Vries und Diemer¹ eine Bleiaktivität von 1,3 h Halbwertszeit, die später von Fajans und Voigt² ge-

¹ H. de Vries u. G. Diemer, *Physica* **6**, 599 [1939].

² K. Fajans u. A. F. Voigt, *Physic. Rev.* **60**, 619 [1941].

¹ J. R. Arnold u. N. Sugarman, *J. chem. Phys.* **15**, 703 [1947].

² A. Flammersfeld, *Z. Naturforsch.* **2a**, 370 [1947].



nauer zu 1,1 h festgelegt wurde, ohne daß den Verff. die Zuordnung einer Massenzahl möglich war. Maurer und Ramm³ zeigten durch Aktivierung von radiogenem Blei mit Neutronen die Entstehung aus dem stabilen ^{204}Pb . Templeton und Mitarbb.⁴ erzeugten das 1,1-h-Pb durch Deuteronen-Beschuß von Tl und wiesen es auch als Tochtersubstanz des beim α -Beschuß von Tl bzw. Deuteronen-Beschuß von Pb-Isotopen entstehenden 12-h-Bi nach. Unter Berücksichtigung der Ausbeuten für (α, n) -, $(\alpha, 2n)$ - usw. bzw. (d, n) -, $(d, 2n)$ - usw. Prozesse sollte dies ein ^{204}Bi sein. Damit war für das 1,1-h-Pb auf ein Isomer zum stabilen ^{204}Pb zu schließen.

Diese Zuordnung kann aus zwei Gründen angezweifelt werden:

1. Nach der Mattauchschen Isomenregel existieren für g-g-Kerne keine isomeren Zustände. Bisher sind Ausnah-

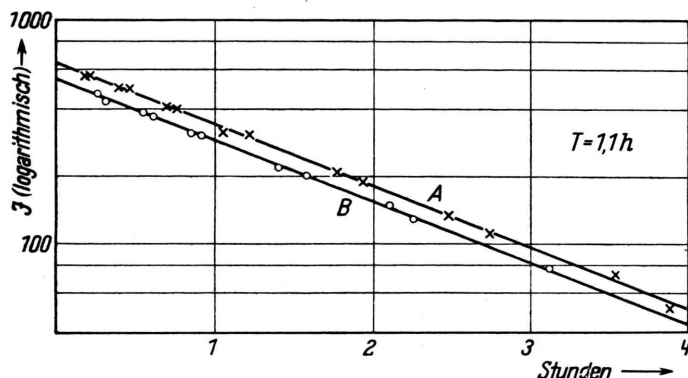


Abb. 1. Abfall zweier gleichzeitig bestrahlter Pb-Präparate, A: ohne Absorber, B: in In-Absorber aktiviert.

men mit Sicherheit nicht bekannt, abgesehen von metastabilen Zuständen mit Halbwertszeiten bis zu einigen Millisek.

2. Bei der Auffassung des 1,1-h-Pb als isomeren Zustand zum ^{204}Pb hätte dieses eine ungewöhnlich große Anregungsenergie von 1,279 MeV⁵. Zur Erklärung der großen Halbwertszeit müßte dann ein Spin von 7—9 für das $^{204}\text{Pb}^*$ angenommen werden.

Es schien daher interessant, die obige Zuordnung zu prüfen und zu untersuchen, ob die genannte Aktivität z. B. durch Einfang langsamer Neutronen in Pb herstellbar ist. Ein derartiger Nachweis ist bisher noch nicht gelungen, weil der Wirkungsquerschnitt für langsame Neutronen offensichtlich sehr klein ist. Deshalb sind Untersuchungen mit konstanten natürlichen Neutronenquellen nicht ausführbar, während bei Verwendung der weniger gut reproduzierbaren künstlichen Neutronenquellen eine geeignete Methode fehlte. Mit der Hochspannungsanlage des Institutes und einer besonderen Anordnung schien dieser Nachweis jedoch möglich.

³ W. Maurer u. W. Ramm, Z. Physik **119**, 602 [1942].

⁴ D. H. Templeton, J. J. Howland u. I. Perlman, Physic. Rev. **72**, 766 [1947].

⁵ A. W. Sunyar, D. E. Alburger, G. Friedlander, M. Goldhaber u. G. Scharff-Goldhaber, Physic. Rev. **78**, 326 [1950], Abs. H 4.

Versuchsreihe	Bestrahltes Präparat	Verminder. d. Aktiv. durch Abschirm. mit		Bemerkung
		Cd	In	
1	Pb	$(10 \pm 2)\%$	$(15 \pm 2)\%$	ohne Paraffin
2	Pb		$(1 \pm 2)\%$	
3	Pb		$(66 \pm 5)\%$	
4	In	$(87 \pm 5)\%$		

Tab. 1.

Die Aktivierung von zwei identischen Bleiblechen, davon eines in einer Cadmium- bzw. Indiumhülle zur Absorption der langsamen Neutronen, das andere wegen der einheitlichen Geometrie in einer Aluminiumhülle, geschah gleichzeitig, und zwar auf einer rotierenden Scheibe. So erhielt jedes Präparat sehr genau die gleiche Neutronenintensität. Bestrahlt wurde während einer Stunde mit durch 3 cm Paraffin verlangsamen $(\text{Be} + d)$ -Neutronen. Die Scheibe lief in einem geschlossenen Paraffinblock.

Es wurden zwei verschiedene Sorten reinsten Bleis der Unterharzer Berg- und Hüttenwerke G.m.b.H. in Form 1 mm starker Bleche verwandt⁶. Mit diesen Präparaten zeigten sich nur die zum Blei gehörenden Halbwertszeiten von 1,1 und 3,3 h, während bei den anderen Bleisorten Verunreinigungen sich wegen ihres oft viele Zehnerpotenzen größeren Aktivierungsquerschnitts bemerkbar machten.

Um die Aktivität des reinen β -Strahlers ^{209}Pb (3,3 h) nicht mitzumessen, wurden für die Messungen γ -Zählrohre verwandt. Eine gute γ -Empfindlichkeit gab ein 100 μ Al-Zählrohr, umgeben mit einer 0,25 mm starken Pb-Folie. Es wurde stets mit zwei Zählrohren und Verstärkern gearbeitet und die über die Zählrohre gelegten Präparate untereinander ausgetauscht. Man erhielt so je Zählrohr zwei logarithmische Abfallsgeraden, wie es Abb. 1 zeigt.

Die Mittelwerte aus den Ergebnissen von je 4—8 Versuchen, bei denen alle möglichen Vertauschungen vorgenommen wurden, bringt Tab. 1. Versuchsreihe 1 zeigt, daß die Aktivität des Bleis in Cadmium um 10% geringer ist, d. h. 10% der Aktivität des unabgeschirmten Pb-Präparates durch thermische (Cadmium-) Neutronen erzeugt werden.

In Versuchsreihe 2 wurde statt Cadmium eine Indiumhülle verwendet, welche teilweise thermische Neutronen und vorwiegend Resonanzneutronen von 1,5 eV absorbiert. Eine noch stärkere Aktivitätsverminderung (15%) wurde festgestellt. Das 1,1-h-Blei entsteht also auch durch In-Resonanzneutronen.

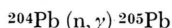
Um sicherzustellen, daß Indium nicht nennenswert schnelle Neutronen absorbiert, wurde in gleicher Geo-

⁶ Hrn. Dr. Pickhart, Hanau, und Hrn. Dr. Fischer, Frankfurt a. M., sind wir für die Vermittlung, dem Unterharzer Berg- u. Hüttenwerk G.m.b.H., Goslar, für die Überlassung von Bleiprobe sehr zu Dank verpflichtet.

metrie ohne Paraffin bestrahlt. Innerhalb der Fehlergrenzen war keine Verminderung der Aktivität durch eine Indium-Umhüllung feststellbar (Versuchsreihe 3).

Trotz des oben über die Reinheit der Pb-Präparate Gesagten besteht die Möglichkeit, daß die Differenz der beiden Abfallskurven durch eine aus einer Verunreinigung stammenden γ -Aktivität von ebenfalls etwa 1 h Halbwertszeit hervorgerufen wird. Hier kommt in erster Linie ^{116}In mit $T = 54$ min in Frage, da Indium sich wegen seines großen Wirkungsquerschnittes gegenüber thermischen Neutronen noch in einer Beimengung von 0,0001% bemerkbar machen würde. In Versuchsreihe 4 wurde deshalb Indium in der bisherigen Geometrie in Paraffin aktiviert. Da in diesem Fall der Abschirmungseffekt durch Cd größer war als derjenige durch In, können die durch die Versuchsreihen 1 und 2 erhaltenen Resultate nicht auf eine Verunreinigung im Blei zurückzuführen sein. In gleicher Weise wurden auch die 1- bis 1,4-h-Aktivitäten von Zn, Sn und Ba ausgeschlossen, obwohl es gemäß Angaben des Hüttenwerkes unwahrscheinlich war, daß diese Elemente einen nennenswerten Beitrag zur Aktivität liefern konnten.

Die obigen Versuche haben also gezeigt, daß das 1,1-h-Blei durch Aktivierung mit thermischen Neutronen und In-Resonanzneutronen (1,5 eV) erhalten werden kann. Es muß demnach durch einen Neutronen-Anlagerungsprozeß entstehen. Auf keinen Fall kann ein isomeres $^{204}\text{Pb}^*$ durch thermische Neutronen erzeugt werden, da ein stabiles ^{203}Pb nicht existiert. Unter der Voraussetzung, daß beim Blei durch (Be+d)-Neutronen nur eine einzige 1,1-h-Aktivität auftritt³, muß also dieser Körper dem ^{205}Pb durch die Reaktion



zugeordnet werden. Die Anlagerung findet jedoch vorzugsweise, wie bei der Entstehung des ^{209}Pb und ^{210}Bi mit Neutronen höherer Energie statt. Das ^{205}Pb zerfällt vermutlich durch K-Einfang in stabiles ^{205}Tl .

Hrn. Privatdozent Dr. Flammersfeld möchte ich für die Anregung zu dieser Arbeit und ihre Förderung meinen besten Dank aussprechen.

Ein Zählrohr zur Messung von Reichweitekurven von α -Strahlern

Von B. Gysae

Kaiser-Wilhelm-Institut für Physik, Hechingen
(Z. Naturforschg. 5a, 403–404 [1950]; eingeg. am 20. Juni 1950)

Zur Aufnahme von Reichweitekurven von α -Strahlern¹ wurde ein Zählrohr in Verbindung mit einem Propor-

tionalverstärker mit Widerstands-Kapazitäts-Kopplung und kleiner Zeitkonstante, der nur auf α -Strahlen anspricht, benutzt. Dieses beruht auf dem Prinzip, daß sich Präparat und Zählrohr im gleichen Gasraum befinden, so daß die zu messende Substanz ohne Zwischenschaltung eines Fensters meßbar ist (Abb. 1). Zu diesem Zweck ist der Zählrohrmantel siebartig durchlöchert, die Löcher haben etwa 2 mm Durchmesser, dazwischen ist ein Steg von etwa 0,2 mm stehen geblieben, die einzelnen Lochreihen sind gegeneinander versetzt, um möglichst wenig Material stehen zu lassen.

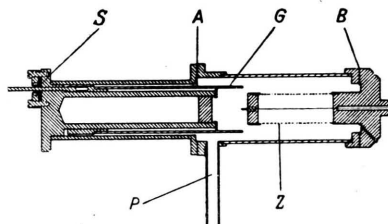


Abb. 1.

Das Zählrohr Z ist auf einem Bernsteinflachschliff B aufgebaut, durch diesen läßt es sich konzentrisch in einen Glaszylinder einsetzen. Das zu messende Präparat liegt auf der Innenseite dieses Glaszylinders, in definiertem Abstand vom Zählrohr. Auf der Gegenseite des Glaszylinders ist bei A ein zweiter Flachschliff angebracht, der einen Ansatz aus Aluminium trägt. In diesem Ansatz ist auf einem als Gleitfläche ausgebildeten inneren Aluminiumzylinder ein auf einem Metallring aufgekitteter Glaszylinder G verschiebbar. Der Durchmesser ist so gewählt, daß er vorgeschoben gerade zwischen Zählrohr und Präparat liegt. Die Verschiebung im Vakuum geschieht durch eine nach außen gehende Stange, deren Dichtung eine Simmer-Manschette S bewirkt. Die Evakuierung bzw. das Einlassen des benötigten Argons in Glaszylinder und Zählrohr erfolgt durch den Pumpstutzen P, dieser ist in den Metallschliff eingesetzt, um die Symmetrie des äußeren Glasrohrs nicht zu stören.

Zur Aufnahme einer Reichweitenkurve konnte der von den α -Strahlen durchlaufene Weg einmal fein durch Variation des Gasdruckes geändert werden, außerdem grob durch Einbringen von Aluminiumfolien zwischen Präparat und Zählrohr. Der vorschiebbare Glaszylinder ermöglichte es, bei gleicher Spannung und gleicher Lage des

¹ B. Gysae u. H. Korsching, Z. Naturforschg. 2a, 475 [1947].

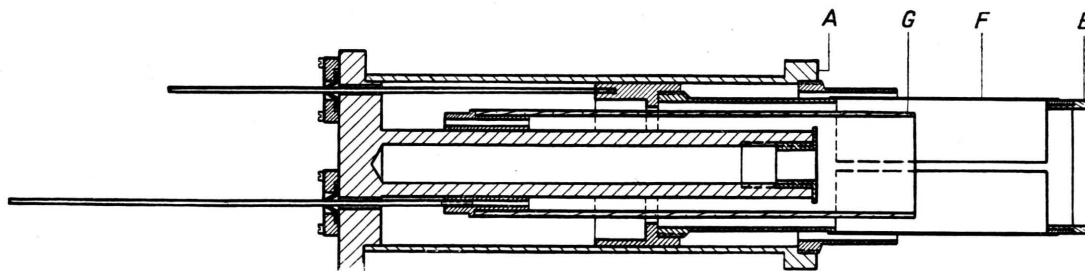


Abb. 2.

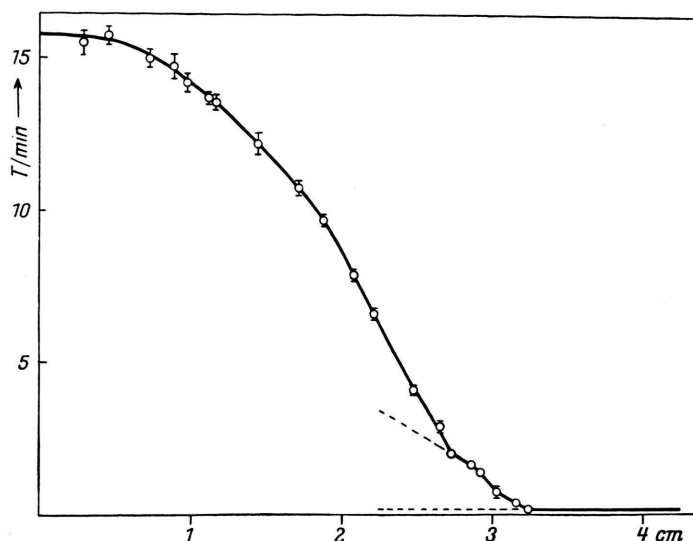


Abb. 3. Reichweitekurve eines Uranpräparates.

Präparates den Nulleffekt zu messen und das störungsfreie Arbeiten des Zählrohrs zu kontrollieren. Der Nulleffekt des Zählrohrs betrug 0,2–0,3 T/min.

Um das zeitraubende und schwierige Einlegen der Aluminiumfolien zu ersparen, wurde der bei A anzusetzende Ansatz später durch einen anderen ersetzt (Abb. 2). Und zwar wurde jetzt auch die Innenfläche des äußeren Aluminiumzylinders als Gleitfläche ausgebildet, auf der ein Messingring nach der gleichen Methode wie der Glaszylinder verschiebbar ist. Auf diesen Ring läßt sich ein Messingzylinder F aufschrauben. Bei diesem ist der Teil, der vorgeschoben vor dem Zählrohr liegt, bis auf zwei dünne Stege ausgeschnitten, darüber werden zylinderförmig Aluminiumfolien geklebt. Am Kopf des Zylinders ist aus Isolationsgründen noch ein Bernsteinring B, um mit Sicherheit einen Kontakt mit der Zählrohrhochspannung zu vermeiden, angebracht.

Durch diesen neuen Ansatz, der also sowohl die Aluminiumfolien wie auch den früher erwähnten Glaszylinder enthält, wurde eine erhebliche Beschleunigung der Messung erzielt, zudem die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse wesentlich verbessert.

Die zu messenden Präparate waren auf Filterpapier aufgetragene, feinverteilte Fällungen, die in definierter Lage zum Zählrohr auf dem inneren Glaszylinder lagen. Die Aufnahme einer Reichweitekurve erfolgte so, daß jeweils bei einem bestimmten Argondruck zunächst die Zählrohrcharakteristik ermittelt wurde, dann in dem ermittelten Spannungsbereich abwechselnd mit und ohne vorgeschobene Aluminiumfolie gemessen wurde, bzw. durch Verschieben des Glaszylinders der Nulleffekt kontrolliert wurde.

Es zeigte sich, daß bei räumlich kleinen Präparaten ein Folien-Halbzylinder ausreichend war, d. h. es war dann möglich, auf dem Zylinder 2 Aluminiumfolien aufzubringen und durch Drehen des Flachschriffes einmal mit der

einen oder anderen zu messen. Man erhält so für einen eingestellten Druck jeweils drei verschiedene Punkte der Kurve.

Die Bestimmung des Luftäquivalents der Aluminiumfolien erfolgte durch Ausmessen und Wägen. Durch Auswechseln des Folienzylinders konnte mit den verschiedensten Folien gearbeitet werden, ohne die Lage des Präparates zu ändern; die mit verschiedenen Folien gemessenen Kurven stimmten vollkommen überein.

Um das gute Arbeiten mit dem Zählrohr zu zeigen, wurden einige der bekannten α -Strahler gemessen. Abb. 3 zeigt die für ein Uranpräparat erhaltene Kurve, in der deutlich die beiden Reichweiten erkennbar sind, sie liegen bei 2,7 und 3,25 cm, was gut mit den anderweitig für Uran bestimmten Werten übereinstimmt². Auch für Sm und Po ergaben sich die aus der Literatur bekannten Werte.

² S. A. Wytzes u. G. J. van der Maas, *Physica* 13, 49 [1947].

Massenspektrometrische Bestimmungen an Argon aus Kalisalzen

Von M. Pahl und J. Hiby

Ehemalig. Kaiser-Wilhelm-Institut für Physik, Hechingen

und von F. Smits und W. Gentner

Physikalisches Institut der Universität Freiburg i. Br.

(Z. Naturforschg. 5 a, 404–405 [1950]; eingeg. am 31. Mai 1950)

Wie an anderer Stelle mitgeteilt¹, sind an Kalisalzen aus Buggingen (Oligozän des Oberrheins) und an einer Sylvinitprobe aus Friedrichshall I (Sehnde bei Hannover) Bestimmungen des Argongehalts durchgeführt worden. Dort finden sich auch genauere Angaben über die Schichten, aus denen die untersuchten Kaliprobe stammen. Im folgenden berichten wir über massenspektrometrische Kontrolluntersuchungen der aus den Kalisalzen gewonnenen Argonproben.

Es wird dabei festgestellt, in welchem Ausmaß das aus dem K-Zerfall des Kaliums stammende ^{40}A durch Luftargon verunreinigt ist. Hierzu wurde jeweils das Mengenverhältnis der Isotope $^{40}\text{A}/^{36}\text{A}$ gemessen, das neuerdings Nier² in normalem Luftargon zu $296,0 \pm 0,5$ bestimmt hat. Aus den gewonnenen Ergebnissen folgt, inwieweit das gemessene Argon radioaktiven Ursprungs ist. Dadurch soll der natürliche K-Zerfall des Kalium 40 in Argon 40 quantitativ erfaßt und festgestellt werden, unter welchen Bedingungen sich das Kalium-Argon-Verhältnis zu Altersbestimmungen heranziehen läßt.

In einem Arbeitsgang konnten jeweils 200 g Kalisalze verarbeitet werden, die höchstens 6 mm³ Argon liefern. Für die massenspektrometrische Bestimmung wurden mehrere solche Argonproben in einem Röhrchen mit aktiver Kohle gesammelt. Die Isotopenverteilung der Argonprobe

¹ F. Smits u. W. Gentner, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, im Erscheinen.

² A. O. Nier, *Physic. Rev.* 77, 789 [1950].