

# Sehr langlebige natürliche $\alpha$ -Strahler

Von W. PORSCHEN und W. RIEZLER

Aus dem Institut für Strahlen- und Kernphysik der Universität Bonn

(Z. Naturforsch. **11 a**, 143–151 [1956]; eingegangen am 3. November 1955)

Die Elemente La, Ce, Pr, Nd, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Cp, Hf, W, Re, Os, Ir, Pt, Au, Tl, Pb, Bi wurden mit Hilfe von Kernplatten auf schwache  $\alpha$ -Aktivität hin untersucht. Dabei zeigte sich bei Nd, W, Pt und Bi ein positiver Effekt. Bei Nd konnte  $\text{Nd}^{144}$  als aktives Isotop nachgewiesen werden. Bei W ist die Zuordnung des beobachteten schwachen Effekts noch unklar.

Radioaktiven Zerfall unter Aussendung von  $\alpha$ -Teilchen findet man vorwiegend bei schwersten Kernen. Eine Betrachtung der exakten Kernmasse zeigt jedoch, daß im ganzen oberen Drittel des periodischen Systems ein  $\alpha$ -Zerfall energetisch möglich sein sollte. Dies ist besonders deutlich zu erkennen, wenn man die Massendefektkurve nicht wie üblich mit  $\text{O}^{16}$ , sondern mit  $\text{He}^4$  als Massennormale aufträgt (Abb. 1). Ein Ansteigen dieser Kurve bedeutet, daß die Abtrennung eines  $\alpha$ -Teilchens im Mittel mit Energiegewinn verbunden ist. Je steiler die Kurve ist, desto größer ist die mittlere Zerfallsenergie. Da längs des Energietales die Neutronenzahl etwas schneller ansteigt als die Protonenzahl,

Zahlen, die leichten Isotope stärker zum  $\alpha$ -Zerfall neigen als die schweren. Bis vor kurzem war außerhalb der klassischen radioaktiven Reihen am Ende des periodischen Systems nur ein einziger natürlicher  $\alpha$ -Strahler bekannt<sup>1</sup>,  $\text{Sm}^{147}$ . In den letzten Jahren wurde durch künstliche Kernumwandlungen eine Reihe von  $\alpha$ -strahlenden neutronenarmen Isotopen vor allem im Gebiet der Seltenen Erden erzeugt<sup>2</sup>. Die Nachweisgrenze für Radioaktivität liegt bei Verwendung von elektrischen Zählgeräten etwa bei einer Halbwertszeit von  $10^{13}$  bis  $10^{14}$  Jahren. Strahler mit größeren Halbwertszeiten können wegen des unvermeidbaren Nulleffekts nicht mehr nachgewiesen werden. Die in den letzten Jahren sehr hoch entwickelte Kernplattentechnik erlaubt es nun, diese Grenze etwa auf  $10^{17}$  Jahre heraufzusetzen. Natürlich tritt auch hier eine Störung durch radioaktive Verunreinigungen (Sm, Th, U, Po usw.) auf. Diese Elemente sind in Spuren sowohl in der Emulsion als auch in den zum Imprägnieren benutzten Chemikalien vorhanden. Wie man aus Tab. 3 ersieht, liegt die Energie der  $\alpha$ -Teilchen bei den meisten bisher bekannten Strahlern oberhalb von 3,98 MeV; die einzige Ausnahme bildet  $\text{Sm}^{147}$  mit 2,12 MeV. Findet man eine Spurengruppe zwischen 2,5 und 3,8 MeV, so kann diese nicht von einer derartigen Verunreinigung herrühren. Anders ist es mit Spuren im Intervall unter 2,5 MeV. Diese könnten einer Sm-Verunreinigung zuzuschreiben sein, und es bedarf in jedem Falle einer besonders sorgfältigen Untersuchung, um dies auszuschließen. Die stärksten Sm-Verunreinigungen treten bei den Seltenen Erden auf, vor allem beim Neodym und beim Gadolinium.

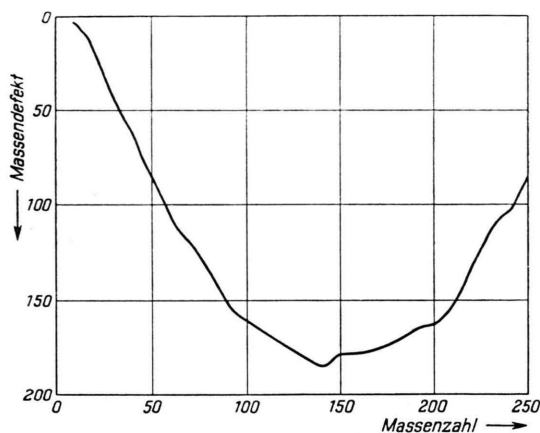


Abb. 1. Packungsdefektkurve mit  $\text{He}^4$  als Massennormale. Massendefekt  $= 1000[M - (A/4)M_0]$ ,  $M_0 = 4,00386$ .

bringt die Abspaltung eines  $\alpha$ -Teilchens bei den leichteren Isotopen eines Elementes das Folgeprodukt der Sohle des Energietales näher, bei den schweren Isotopen wird es durch diesen Effekt von der Talsohle entfernt. Daher werden im allgemeinen, nämlich dann, wenn das Energietal keine Verwerfungen zeigt wie zum Beispiel bei den magischen

## Experimenteller Teil

Zum Nachweis der  $\alpha$ -Teilchen wurden überwiegend Ilford C 2-Platten ( $100 \mu$ ;  $1 \times 3$  Zoll) benutzt. E 1-Platten erlau-

<sup>1</sup> G. v. Hevesy u. M. Pahl, Nature, Lond. **130**, 846 [1932].

<sup>2</sup> J. O. Rasmussen jr., S. G. Thompson u. A. Ghiorso, Phys. Rev. **89**, 33 [1953].



ben zwar infolge ihres feinen Kornes eine genauere Reichweitenmessung; sie haben aber den Nachteil, daß bei ihnen das Fading (Schwund des latenten Bildes) größer ist, was bei Lagerzeiten von einigen Monaten sehr unangenehm wird. Bei einigen Versuchen wurde Ilford C2-Emulsion in Gel-Form benutzt.

Will man ein Element auf  $\alpha$ -Strahlung untersuchen, so muß man dieses Element in die Emulsion einlagern. Diese Einlagerung kann auf zwei Arten geschehen: durch Imprägnieren von Kernplatten oder durch Vermischen mit Emulsion in Gel-Form.

Das *Imprägnieren von Kernplatten* kann durch Baden der Platten in einer wäßrigen Lösung einer geeigneten Substanz erfolgen. Will man gute Ergebnisse erzielen, so muß diese Verbindung sorgfältig ausgewählt werden. Die Verbindung muß wasserlöslich sein, sie darf die Empfindlichkeit der Emulsion nicht vermindern und sie darf keinen Anlaß zur Schleierbildung geben. Die benutzte Lösung soll ungefähr neutral ( $pH=6-8$ ) sein. Saure Lösungen verstärken das Fading<sup>3</sup>; außerdem führen sehr stark saure Lösungen zu einer Gerbung der Gelatine. Schwach basische Lösungen wirken konservierend auf das latente Bild. Ammoniakalische Lösungen führen zur Verschleierung der Emulsion.

Die Kationen von Leichtmetallen geben kaum Anlaß zu Störungen. Die Kationen von Schwermetallen jedoch führen oft zu einer Desensibilisierung oder einer starken Schleierbildung. Drei, vier und mehrwertige Ionen werden leicht an der Oberfläche der Emulsion infolge Ionen-Kombination mit der Gelatine absorbiert<sup>4</sup>.

Bei den Schwermetallen wählt man eine Verbindung aus, in der das betreffende Element als Anion auftritt.

Gut geeignet sind auch starke organische oder anorganische Komplexverbindungen. In zahlreichen Vorversuchen wurde bestimmt, welche Verbindungen zum Imprägnieren von Kernplatten geeignet sind. Tab. 1 gibt eine Zusammenstellung dieser Verbindungen.

Die Ammonium-Citrat-Komplexe eignen sich sehr gut zum Imprägnieren, da sich der  $pH$ -Wert genau auf 7 einstellen läßt.

Z	Element	Verbindung
57—71	Seltene Erden	S. E.-Ammoniumcitrat
72	Hafnium	Hafnium-Ammoniumcitrat
74	Wolfram	Kalium-Wolframat $K_2WO_4 \cdot 2 H_2O$
75	Rhenium	Kaliumperhenat $KReO_4$
76	Osmium	Kaliumosmiat $K_2OsO_4$
77	Iridium	Kaliumiridiumcyanid $K_3Ir(CN)_6$
78	Platin	Kaliumplatincyand $K_2Pt(CN)_4$
79	Gold	Kaliumgoldcyanid $KAu(CN)_2$
81	Thallium	Thalliumammoniumacetat m. Zusatz von Weinsäure
82	Blei	Bleiammoniumcitrat
83	Wismut	Wismutammoniumcitrat

Tab. 1. Verbindungen zum Imprägnieren von Kernplatten.

Die Konzentration der Lösungen betrug meistens 10 bis 20 mg Element/cm<sup>3</sup>. Nur beim Osmium und Thallium wurden stärker verdünnte Lösungen benutzt (siehe auch Tab. 3).

<sup>3</sup> G. Albouy u. H. Faraggi, J. Phys. Radium **10**, 105 [1949].

<sup>4</sup> H. Yagoda, Radioactive Measurements with Nuclear Emulsions, S. 132.

Bei der vielfach üblichen Bademethode wird die Emulsion in einer wäßrigen Lösung gebadet, wobei eine Diffusion der Lösung in die Emulsion stattfindet<sup>5</sup>. Der Nachteil dieses Verfahrens liegt darin, daß die Menge der aufgenommenen Substanz nicht direkt bekannt ist. Bei verdünnten Lösungen nimmt die Emulsion ca. das 3-fache ihres Eigenvolumens an Lösung auf<sup>6</sup>. Die Masse der eingelagerten Substanz läßt sich zwar durch eine chemische Analyse bestimmen, dieses Verfahren ist aber etwas umständlich. Außerdem können wasserlösliche Emulsionsbestandteile (z. B. Glycerin) beim Baden ganz herausgewaschen werden. Dies führt zu einer Änderung des Schrumpfungsfaktors und des Bremsvermögens der Emulsion.

Bei unseren Versuchen benutzten wir zum Imprägnieren der Platten meistens ein *Auftropfverfahren*, bei einigen Versuchen ein *Misch-Verfahren*.

Beim ersten befindet sich auf dem Boden einer flachen Dose eine Glasplatte, die mit Hilfe einer Justiervorrichtung genau waagrecht eingerichtet wird. Die zu imprägnierende Kernplatte wird zunächst mit einigen Tropfen destillierten Wassers angefeuchtet. Dann gibt man mit einer Pipette 0,50 ml Lösung auf die Platte und verteilt sie gleichmäßig. Die Luft in der Dose ist mit Wasserdampf gesättigt (feuchtes Filtrierpapier). Die Lösung ist nach 10—15 Std. in die Emulsion hineindiffundiert. Die Konzentration betrug 5—10 mg Element pro Platte ( $1 \times 3$  Zoll, 100  $\mu$ ). Die Nachteile, die dem Badeverfahren anhaften, fallen hier weg. Allerdings ist die Konzentration in der Nähe der Oberfläche größer als im Innern. Dies kann dazu führen, daß sich der Schrumpfungsfaktor mit der Entfernung von der Oberfläche etwas ändert.

Beim *Misch-Verfahren* verwendet man C2-Emulsion in Gel-Form. Als Unterlage benutzt man eine Glasplatte, die mit einer dünnen Schicht Gelatine überzogen ist. Hierdurch wird eine bessere Schichthaftung erzielt. Am Rand der Glasplatte entlang zieht man einen Strich mit einem Fettstift, um ein Abfließen der Emulsion beim Guß zu vermeiden. Man erwärmt eine kleine Menge Emulsion im Wasserbad auf 50 bis 60° C. Für eine Platte von 100 cm<sup>2</sup> (100  $\mu$ ) braucht man 8 cm<sup>3</sup> Emulsion in Gel-Form. Die geschmolzene Emulsion wird mit der betreffenden Lösung innig vermischt und dann auf die Glasunterlage gegossen, die genau waagrecht justiert ist. Nach etwa 30—50 Min. ist die Emulsion erstarrt. Hierauf bringt man die Platte in einen Exsiccator.

Dieses Verfahren hat zwei Vorteile. Zu Beginn des Versuches hat man keinen Untergrund von alten Spuren, was besonders beim Nachweis von schwachen Aktivitäten wichtig ist. Außerdem findet keine Anreicherung der eingelagerten Substanz in der Nähe der Oberfläche statt.

Nach der Imprägnierung werden die Platten gelagert. Da man sehr schwache Aktivitäten nachweisen will, ist eine lange Exposition erforderlich (10—200 Tage). Beim *Lagern* tritt eine Schwächung des latenten Bildes auf, so daß alte Spuren eine geringere Korndichte zeigen als frische (Fading). Zahlreiche Untersuchungen sind durchgeführt worden, um die

<sup>5</sup> E. Broda, J. Sci. Instrum. **24**, 136 [1947].

<sup>6</sup> K. Jenkner u. E. Broda, Nature, Lond. **164**, 412 [1942].

Faktoren zu bestimmen, die das Fading beeinflussen<sup>3, 7, 8</sup>. Der Schwund des latenten Bildes hängt stark von der Temperatur und der relativen Luftfeuchte ab. Bewahrt man Kernplatten z. B. bei  $-82^\circ\text{C}$  in einer trockenen Atmosphäre auf, so ist erst nach Monaten ein geringes Fading festzustellen. Lagert man jedoch die Platten andererseits in einem mit Wasserdampf gesättigten Behälter bei  $30-40^\circ\text{C}$ , so wird das latente Bild in einigen Stunden total zerstört. An der Oberfläche einer Kernplatte ist das Fading stärker als im Innern. Der Einfluß des  $p_{\text{H}}$ -Wertes wurde bereits erwähnt. Nach den Untersuchungen von Albouy und Faraggi<sup>2</sup> beschleunigt die Gegenwart von Sauerstoff das Fading. Demers et al.<sup>8</sup> finden dagegen, daß Sauerstoff keinen Einfluß auf das Fading hat.

Um bei unseren Versuchen das Fading klein zu halten, wurden die Platten in trockenem Stickstoff (32% relative Feuchte; gesättigte  $\text{CaCl}_2$ -Lösung) bei einer Temperatur von  $3-5^\circ\text{C}$  aufbewahrt.

Nach beendeter Lagerung werden die Platten aus dem Kühlschrank entnommen und 20 Min. bei Zimmertemperatur aufbewahrt. Anschließend werden sie gewässert, um die eingelagerte Substanz zu entfernen (30 Min). Hieran schließt sich die Entwicklung an (ID 19; 1:3;  $20^\circ\text{C}$ ). Die Entwicklungszeit richtet sich nach der Vorbehandlung der Platten, da bei schwach alkalischer Imprägnierung eine kürzere Zeit ausreicht, um eine genügende Schwärzung zu erzeugen (20 bis 40 Min.).

Dann folgt ein Unterbrecherbad (Essigsäure 1% und anschließend werden die Platten fixiert (Na-Thiosulfat 300 g pro l). Nach beendeter Fixierung wird die Thiosulfat-Lösung langsam verdünnt, um Spurenverzerrungen zu vermeiden. Dann werden die Platten gründlich gewässert und langsam getrocknet.

Der Ag-Oberflächenfilm, der sich beim Entwickeln bildet, wird im Unterbrecherbad vorsichtig mit der Fingerspitze abgewischt. Reste dieses Films werden nach dem Trocknen mit Methylalkohol entfernt.

Nach dem Entwickeln wurden die Platten mit Leitz-Ortholux-Mikroskopen durchmustert. Es werden nur solche Spuren berücksichtigt, die vollkommen in der Emulsion liegen. Da die interessierenden Spurenlängen nur  $6-15\ \mu$  betragen, ist eine starke Vergrößerung erforderlich (Okular  $6\times$ , Objektiv  $100:1$ ). Der Gesichtsfelddurchmesser bei dieser Vergrößerung ist etwa  $130\ \mu$  (abhängig vom Augenabstand).  $1\text{ cm}^2$  Emulsion entspricht etwa 10 000 Gesichtsfeldern.

Die Durchmusterung erfolgte so, daß jedes Volumen-Element mindestens 2-mal im Gesichtsfeld erschien.

Zur Energiebestimmung ist die Kenntnis der Spurenlänge  $l$  notwendig. Es gilt die Beziehung

$$l^2 = p^2 + S^2 h^2;$$

$p$  = Länge der Projektion der Spur auf die Plattenebene,

$h$  = Höhendifferenz der beiden Spurenden,

$S$  = Schrumpfungsfaktor.

Der Schrumpfungsfaktor ist das Verhältnis

$$S = \frac{\text{Schichtdicke vor dem Entwickeln}}{\text{Schichtdicke nach dem Entwickeln}}$$

oder auch:

$$S = 1 + V_L/V_G;$$

$V_L$  = Volumen der löslichen Emulsions-Anteile,

$V_G$  = Volumen der Gelatine.

Der Schrumpfungsfaktor hängt im wesentlichen von dem AgBr-Gehalt der Emulsion ab.

Weiterhin sind die folgenden Faktoren von Einfluß: Vorbehandlung der Emulsion vor dem Entwickeln (Imprägnierung; d. h. Änderung von  $V_L$ ), Art des Fixierbades (neutral, sauer oder Härtefixierbad), Nachbehandlung (z. B. Glycerinbad nach dem Entwickeln zur Vermeidung des Abblätterns), relative Luftfeuchte während der Exposition und relative Luftfeuchte bei der Lagerung der Platten nach der Entwicklung. Zur Bestimmung des Schrumpfungsfaktors sind verschiedene Verfahren bekannt<sup>9-14</sup>.

Wir haben ein neuartiges Verfahren angewandt: Die Dicke der Emulsion vor dem Entwickeln wird durch Wägung bestimmt; die Dicke nach dem Entwickeln wird mit dem Mikroskop (Immersions-Objektiv) gemessen.

Da der Brechungsindex der Gelatine ( $n_g$ ) nicht genau gleich dem Brechungsindex des Immersionsöles ( $n_0$ ) ist, findet man nicht den wahren Schrumpfungsfaktor  $S'$ , sondern den scheinbaren Schrumpfungsfaktor  $S$  ( $S = S' \cdot n_g/n_0$ ).

Die Kenntnis von  $n_g/n_0$  ist aber nicht notwendig, da die Spurenvermessung später unter den gleichen Verhältnissen stattfindet. Unter dem Schrumpfungsfaktor ist im folgenden stets der scheinbare Schrumpfungsfaktor zu verstehen, da nur dieser eine praktische Bedeutung hat. Im übrigen ist der Unterschied zwischen  $S$  und  $S'$  gering (Beispiel: Immersionsöl Leitz,  $n_0$  (für die D-Linie) = 1,515;

$n_g = 1,528$  für Ilford C 2 ( $20,3^\circ\text{C}$ ; 51% relative Feuchte),

$n_g = 1,516$  für Ilford C 2 ( $20,3^\circ\text{C}$ ; 75% relative Feuchte)<sup>13</sup>.

Es mögen bedeuten:

$m_V$ : Masse der Kernplatte vor dem Entwickeln,

$m_N$ : Masse der Kernplatte nach dem Entwickeln,

$m_U$ : Masse der Glasunterlage,

$m_E$ : Masse der Emulsion vor dem Entwickeln,

$m_G$ : Masse der Gelatine nach dem Entwickeln,

$\rho_E$ : Dichte der Emulsion,

$\rho_G$ : scheinbare Dichte der Gelatine,

$F$ : Fläche der Emulsion,

$D_E$ : Dicke der Emulsion vor dem Entwickeln,

$D_G$ : scheinbare Dicke der Gelatine nach dem Entwickeln.

<sup>7</sup> A. Beiser, Phys. Rev. **81**, 153 [1951].

<sup>8</sup> P. Demers, J. Lapalme u. J. Thouvenin, Canad. J. Phys. **31**, 295 [1953].

<sup>9</sup> J. Rotblat u. C. T. Tai, Nature, Lond. **164**, 835 [1949].

<sup>10</sup> L. Vigneron, J. Phys. Radium **10**, 305 [1949].

<sup>11</sup> F. A. Roads in Fundamental Mechanisms of Photographic Sensitivity, 1951, S. 327.

<sup>12</sup> L. Jenny u. T. Hürli mann, Helv. Phys. Acta **24**, 235 [1951].

<sup>13</sup> L. H. Greenberg u. R. N. H. Haslam, Canad. J. Phys. **31**, 1115 [1953].

<sup>14</sup> M. Gailloud, Ch. Haenny u. R. Weill, Helv. Phys. Acta **27**, 327 [1954].

Die Dichte der Emulsion in Abhängigkeit von der relativen Luftfeuchte ist bekannt<sup>15</sup> (Tab. 2).

0%	32%	58%	84% rel. Feuchte
3,94	3,88	3,82	3,69 g/cm <sup>3</sup>

Tab. 2.

Die Masse der eingelagerten Substanz beim Imprägnieren ist gering (5–20 mg auf 800 mg Emulsion), so daß hierdurch nur eine unwesentliche Änderung der Dichte hervorgerufen wird (außer bei hygroskopischen Verbindungen). Die Dichte der Gelatine wurde experimentell bestimmt. Die Dicke einer entwickelten Emulsion wurde mit einem Immersionsobjektiv ausgemessen; man erhält also nicht die „wahre“ Dichte, sondern die „scheinbare“ Dichte. Es ergab sich

$$\varrho_G = 1,24 \text{ g/cm}^3.$$

Zur Bestimmung von  $S$  sind 2 Wägungen ( $m_V$ ;  $m_N$ ) und die Messung von  $D_G$  erforderlich. Man mißt die Dicke der Emulsion nach dem Entwickeln an 30 Stellen aus.

Für die Wägungen wurde eine Torsionswaage benutzt. Aus diesen Messungen erhält man

$$\begin{aligned} m_G &= F D_G \varrho_G, & m_U &= m_N - m_G, \\ m_E &= m_V - m_U, & D_E &= m_E / F \varrho_E, \end{aligned}$$

und endlich  $S = D_E / D_G$ .

Der Vorteil dieses Verfahrens liegt darin, daß kein Eingriff in die Emulsion erfolgt (z. B. bei der direkten Bestimmung oder beim Wägeverfahren nach J e n n y und H ü r l i m a n n<sup>12</sup>). Auch ist keine Einlagerung von radioaktiven Substanzen oder Beschuß mit  $\alpha$ -Teilchen erforderlich.

Voraussetzung ist nur, daß die Exposition der Platten unter kontrollierten Feuchtigkeitsbedingungen stattfindet.

Die Dicke der entwickelten Emulsion hängt von der relativen Luftfeuchte ab<sup>16,17</sup>; diese schwankt in Innenräumen zwischen 35 und 80%. Hierdurch werden Änderungen der Schichtdicke bis zu 25% erzeugt. Daher wurden die Platten vor jeder Messung mindestens einen Tag lang in einem Exsiccator bei 55% relativer Feuchte aufbewahrt [35-proz.  $\text{CaCl}_2$ -Lösung oder gesättigte  $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ -Lösung]. Nach der Entnahme aus dem Exsiccator bedeckt man die Emulsion mit einer dünnen Schicht Immersionsöl. Das Öl wird nach der Messung mit Benzol abgewischt.

Aus der Spurenlänge bestimmt man die Energie der  $\alpha$ -Teilchen. Die Energie-Reichweite-Beziehung läßt sich aus der Zusammensetzung der Emulsion berechnen oder experimentell bestimmen. Wir benutzten die experimentelle Kurve von F a r a g g i<sup>19</sup>. Es ist zu berücksichtigen, daß die Zusammensetzung von Emulsion von Lieferung zu Lieferung etwas schwankt; außerdem wird durch die Einlagerung einer Substanz das Bremsvermögen der Emulsion etwas verändert. Will man eine sehr genaue Energiebestimmung machen, so ist es erforderlich, jede Emulsion mit einem geeigneten  $\alpha$ -Strahler (Sm, Th) zu eichen. Dies wurde in einzelnen Fällen gemacht (z. B. beim Nd).

<sup>15</sup> Ilford Mitteilungen.

<sup>16</sup> M c A l i s t e r u. W. K e a m, Proc. Phys. Soc., Lond. A **64**, 91 [1951].

<sup>17</sup> A. J. O l i v e r, Rev. Sci. Instrum. **25**, 326 [1954].

Legt man die Energie-Reichweite-Kurve von F a r a g g i ohne weitere Kontrollmessungen zugrunde, so beträgt der Fehler maximal 5%.

In Kontrollversuchen wurde zunächst untersucht, welche Spurenverteilung man in ungetränkten Platten (Abb. 2) erhält. Die meisten Spuren rühren von radioaktiven Verunreinigungen her. Die Tab. 3 gibt einen Überblick über die betreffenden  $\alpha$ -Strahler.

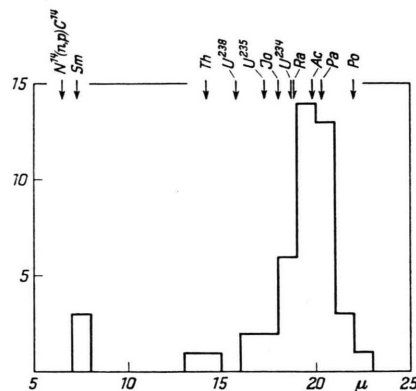


Abb. 2–9. Spurenverteilung in Kernplatten (Abzisse: Reichweite in  $\mu$ ; Ordinate: Zahl der Spuren/1  $\mu$  Intervall (bzw. 0,5  $\mu$  Intervall bei Abb. 5 und 6).

Abb. 2. Ungetränkte Kontrollplatten; 2,5 cm<sup>2</sup>; 100 Tage.

$\alpha$ -Strahler	Energie der $\alpha$ -Teilchen MeV	mittlere Reichweite $\mu$
Samarium	2,12	7,2
Thorium	3,98	14,2
Uran 238	4,18	15,8
Uran 235	4,4	17,3
Ionium	4,68	18,0
Uran 234	4,76	18,7
Radium	4,79	18,8
Aktinium	4,94	19,8
Protaktinium	5,01	20,3
Polonium	5,298	22,0

Tab. 3.

Bemerkenswert ist, daß in der Energieskala zwischen Samarium und Thorium eine große Lücke klappt.

Die Spuren im Intervall 5–7  $\mu$  können sowohl von Samarium als auch von der Reaktion  $\text{N}^{14}(\text{n}, \text{p})\text{C}^{14}$  stammen. Diese Reaktion wurde von E l - B e w e d i<sup>18</sup> und von F a r a g g i<sup>19</sup> mit Ilford-Emulsion untersucht. Für die Gesamtspurenlänge (Proton +  $\text{C}^{14}$ ) ergaben sich die Werte 6,55 bzw. 6,4  $\mu$ . Der Wirkungsquerschnitt dieser Reaktion für langsame Neutronen beträgt<sup>20</sup>  $1,71 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ . Der im wesentlichen durch kosmische Strahlen bedingte thermische Neutronenfluß im Inneren eines Gebäudes beträgt nach den gleichen Autoren 160 Neutronen/cm<sup>2</sup>·Tag. Hieraus errechnet man

<sup>18</sup> F. A. E l - B e w e d i, Proc. Phys. Soc., Lond. A **64**, 584 [1951].

<sup>19</sup> H. F a r a g g i, Ann. Phys., Paris **6**, 325 [1951].

<sup>20</sup> N. K a p l a n u. H. Y a g o d a, Rev. Sci. Instrum. **23**, 155 [1952].



eine Ausbeute von 0,85 Protonen/cm<sup>2</sup> Emulsion (100  $\mu$ ) in 100 Tagen. In den Kontrollplatten wurden etwa 1 Spur von 7  $\mu$ /cm<sup>2</sup> in 100 Tagen gefunden.

Sehr unangenehm im Bereich von 3–10  $\mu$  sind „Pseudospuren“. Hierbei handelt es sich entweder um Verunreinigung in der Emulsion oder um Anlagerung von Silberkörnern an kleine Fasern.

### Ergebnisse

Es wurden insgesamt 23 Elemente untersucht. Bei 19 Elementen konnte keine  $\alpha$ -Aktivität beobachtet werden.

Konzentration eine Kernemulsion desensibilisieren. Es wurden Versuche mit einem Hg-Äthylendiamintetraessigsäurekomplex durchgeführt; dieser Komplex ist sehr stabil. Die maximal zulässige Konzentration betrug aber nur 10<sup>-3</sup> ‰. Daraus ergibt sich, daß man nur eine relativ starke Aktivität ( $T > 10^{13}$  Jahre) nachweisen könnte. Daher wurden keine weiteren Versuche mit Quecksilber durchgeführt.

Als typische Beispiele zeigen die Abb. 3 und 4

Z	Element	Durchmst. Fläche cm <sup>2</sup>	Lagerung Tage	Mittl. Konz. (mg Element pro cm <sup>2</sup> )	mg · d	Energie/Intervall	
						1,5–2,5 MeV	2,5–3,7 MeV
57	Lanthan	1,9	28	0,25	13	5 · 10 <sup>15</sup>	7 · 10 <sup>16</sup>
58	Cer	2,4	30	0,50	36	4 · 10 <sup>16</sup>	2 · 10 <sup>17</sup>
59	Präseodym	1,0	28	0,25	7	2 · 10 <sup>16</sup>	3 · 10 <sup>16</sup>
63	Europium	0,6	20–100	0,25	16	8 · 10 <sup>15</sup>	8 · 10 <sup>16</sup>
64	Gadolinium	10,0	20–60	0,50	200	4 · 10 <sup>16</sup>	2 · 10 <sup>17</sup>
65	Terbium	3,0	60	0,50	90	5 · 10 <sup>16</sup>	1 · 10 <sup>17</sup>
66	Dysprosium	9,0	80	0,50	360	5 · 10 <sup>16</sup>	5 · 10 <sup>16</sup>
67	Holmium	2,0	30	0,50	30	6 · 10 <sup>16</sup>	1 · 10 <sup>17</sup>
68	Erbium	3,5	60	0,25	53	1 · 10 <sup>17</sup>	5 · 10 <sup>17</sup>
69	Thulium	1,5	100	0,40	60	5 · 10 <sup>16</sup>	2 · 10 <sup>17</sup>
70	Ytterbium	1,4	50	0,50	35	1 · 10 <sup>17</sup>	2 · 10 <sup>17</sup>
71	Cassiopeium	1,8	80	0,30	43	1 · 10 <sup>17</sup>	1 · 10 <sup>17</sup>
72	Hafnium	7,0	60–95	0,80	470	2 · 10 <sup>17</sup>	3 · 10 <sup>17</sup>
75	Rhenium	1,5	40–85	0,15	18	2 · 10 <sup>16</sup>	8 · 10 <sup>16</sup>
76	Osmium	25	50–100	0,025	44	1 · 10 <sup>17</sup>	1 · 10 <sup>17</sup>
77	Iridium	7,0	18–55	0,25	80	1 · 10 <sup>17</sup>	5 · 10 <sup>17</sup>
79	Gold	4,3	70–120	0,40	130	3 · 10 <sup>16</sup>	6 · 10 <sup>17</sup>
81	Thallium	1,8	90–230	0,01	3	6 · 10 <sup>15</sup>	2 · 10 <sup>16</sup>
82	Blei	2,0	180	0,50	180	2 · 10 <sup>17</sup>	1 · 10 <sup>18</sup>

Tab. 4. Untere Grenze für die Halbwertszeit in Jahren für die Elemente, bei denen keine  $\alpha$ -Aktivität gefunden wurde.

tet werden. Bei dieser Gruppe von Elementen kann man lediglich eine untere Grenze für die Halbwertszeit gegenüber  $\alpha$ -Zerfall angeben, die gefundenen Werte sind aus Tab. 4 ersichtlich. Diese Grenze wird für 2 Energiebereiche (1,5–2,5 MeV und 2,5–3,7 MeV) berechnet. Im ersten Intervall stört meistens Samarium. Bei den Seltenen Erden betragen die Samarium-Verunreinigungen im allgemeinen 10<sup>-2</sup> ‰; bei den übrigen Elementen 10<sup>-3</sup> ‰. Besonders die Gd-Proben enthielten zunächst ziemlich viel Sm, etwa 0,25% (Johnson, Matthey & Co., London). Durch mehrmalige Reinigung in einer geheizten Austauschsäule (Dowex 50; 200 bis 400 mesh, 85° C) konnte der Sm-Gehalt auf weniger als 3 · 10<sup>-3</sup> ‰ herabgesetzt werden. Als Eluant wurde Milchsäure benutzt<sup>21</sup>.

Bei Osmium und vor allem Thallium konnte nur eine sehr geringe Konzentration verwendet werden, da bei höheren Konzentrationen eine starke Schleierbildung auftrat. In noch höherem Maße gilt das für Quecksilber, dessen Ionen bereits in minimaler

die Spurenverteilungen in Osmium und Iridium-Platten.

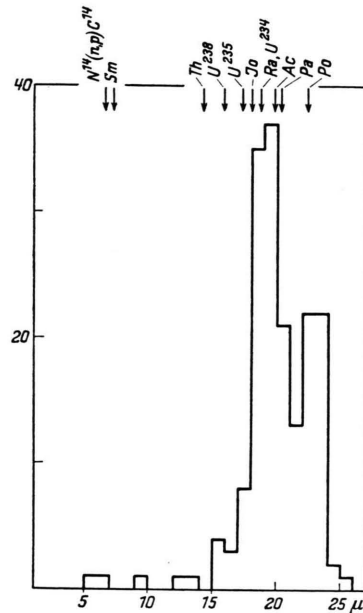


Abb. 3. 10 cm<sup>2</sup> mit 0,26 mg Osmium; 103 Tage.

<sup>21</sup> E. C. Freiling u. R. L. Bunney, J. Amer. Chem. Soc. 76, 1021 [1954].

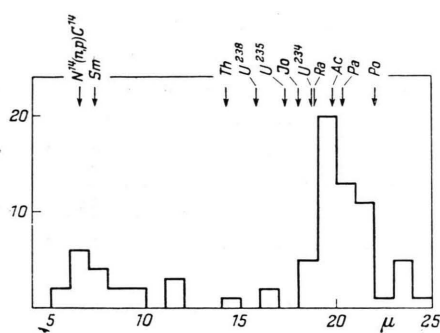


Abb. 4. 5 cm² mit 1,3 mg Iridium; 55 Tage.

### Neodym

Beim Neodym konnte eine Aktivität festgestellt werden<sup>22</sup>. Nach unseren ersten Untersuchungen am Neodym vermuteten wir, daß der beobachtete Effekt von einer Samarium-Verunreinigung herrühre. Allerdings war die mittlere Länge der Spuren für Sm etwas zu kurz (6,73 gegenüber 7,3  $\mu$ ). Waldron, Schultz und Kohman<sup>23</sup> konnten aber auch an sehr gut gereinigtem Neodym eine Aktivität nachweisen. Daraufhin haben auch wir unsere Versuche mit Neodym fortgesetzt. Als Ausgangssubstanz benutzten wir bei der zweiten Versuchsreihe besonders reines Neodymoxyd von Auer. Eine Analyse mit Hilfe von Kernplatten ergab, daß dieses Oxyd etwa 0,02% Sm enthielt. Das Oxyd wurde in Salzsäure gelöst. Dann wurde diese Neodymchloridlösung mit Hilfe eines Ionenaustauschers (Dowex 50; 30 bis 50 mesh) gereinigt. Als Eluant wurde Trilon A, das Natriumsalz der Nitrilotriessigsäure, benutzt<sup>24, 25</sup>. (20 g Trilon A + 20 cm³ NH<sub>4</sub>OH konz. auf 1 l Wasser. Zusatz von Essigsäure ergibt  $p_H = 4,0$ .) Es wurden jeweils die mittleren Fraktionen weiterverarbeitet. Dann wurden El-Platten mit diesem nachgereinigten Neodym getränkt und 27 – 59 Tage gelagert. In diesen Platten wurde eine Gruppe von 33 Spuren mit einer mittleren Reichweite von  $6,27 \pm 0,15 \mu$  gefunden.

Zur Kontrolle wurden El-Platten mit Samarium getränkt. Messungen an waagerechten Spuren ergaben als Sm-Reichweite  $7,25 \pm 0,07 \mu$  entsprechend einer Energie von  $2,12 \pm 0,03$  MeV.

Wir nehmen an, daß die kurzen Spuren in den Neodym-Platten einer  $\alpha$ -Aktivität des Neodyms zuzuschreiben sind.

Für die Energie der  $\alpha$ -Teilchen findet man aus dem Reichweitenunterschied gegenüber den Sm –  $\alpha$ -Teilchen den Wert

$$E_\alpha = 1,8 \pm 0,1 \text{ MeV}.$$

Für die Zerfallskonstante findet man den Wert

$$\lambda = 3,5 \cdot 10^{-17} / \text{Jahr}$$

und für die Halbwertszeit

$$T = \alpha \cdot 2 \cdot 10^{16} \text{ Jahre } (\pm 50\%).$$

Auf Grund des Schalenmodells ist zu vermuten, daß Nd<sup>144</sup> (82 + 2 Neutronen) das aktive Isotop ist; man findet für Nd<sup>144</sup> (Isotopenhäufigkeit  $\alpha = 23,9\%$ ) als Halbwertszeit  $5 \cdot 10^{15}$  Jahre. Als Zerfallsenergie berechnet man daraus nach der Gamow-Formel<sup>26</sup> 1,9 MeV in Übereinstimmung mit dem experimentell gefundenen Wert.

Zur Bestimmung des aktiven Isotops wurden Versuche mit angereichertem Neodym 142, 144, 146 durchgeführt. Die abgetrennten Isotope wurden vom United Kingdom Atomic Energy Research Establishment Harwell bezogen. Weiterhin stand eine Probe von ungetrenntem Neodym gleicher Herkunft zur Verfügung. Mit Hilfe von Kernplatten wurde der Samarium-Gehalt dieser Probe zu 0,075% ( $\pm 10\%$ ) bestimmt; das entspricht 0,013% Sm<sup>147</sup>.

Die Isotopenzusammensetzung der angereicherten Proben im Vergleich zu natürlichem Neodym zeigt Tab. 5. Aus dem Schwächungsverhältnis der Isotope 146 und 148 läßt sich abschätzen, wieviel Sm<sup>147</sup> in der betreffenden Probe noch enthalten war. Diese Zahl ist in der letzten Spalte der Tabelle angegeben.

Isotop:	142	143	144	145	146	148	150	Sm <sup>147</sup>
Nat. Nd	27,1	12,2	23,9	8,3	17,2	5,7	5,6	0,013%
Ang. Nd <sup>142</sup>	83,8	7,43	6,09	1,19	1,17	0,18	0,12	$5 \cdot 10^{-4}$
Ang. Nd <sup>144</sup>	3,42	3,11	84,2	5,84	2,88	0,33	0,22	$1,3 \cdot 10^{-3}$
Ang. Nd <sup>146</sup>	1,98	1,42	3,96	3,05	87,6	1,49	0,50	$1,2 \cdot 10^{-2}$

Tab. 5. Zusammensetzung der angereicherten Neodym-Proben in %.

<sup>22</sup> W. Porschen u. W. Riezler, Z. Naturforschg. **9a**, 701 [1954].

<sup>23</sup> E. C. Waldron, V. A. Schultz u. T. P. Kohman, Phys. Rev. **93**, 254 [1954].

<sup>24</sup> R. C. Vickery, J. Chem. Soc. **1952**, 835, 4357.

<sup>25</sup> J. Loriaers u. D. Carminati, C. R. Acad. Sci. Paris **237**, 1328 u. 1414 [1953].

<sup>26</sup> G. Gamow u. C. L. Critchfield, Theory of Atomic Nucleus and Nuclear Energy Sources, Oxford 1949, S. 174.

$Nd^{142}$ : Zunächst wurde eine Platte mit angereichertem  $Nd^{142}$  imprägniert und 60 Tage gelagert. In  $2,0\text{ cm}^2$  Emulsion mit  $0,35\text{ mg } Nd^{142}$  wurden 20 „normale“ Spuren ( $15-25\ \mu$ ) und 2 Spuren von  $7,3\ \mu$  mittlerer Länge gefunden. Falls  $Nd^{142}$  Träger der Aktivität sein sollte, hätte man etwa 30 Spuren mit einer mittleren Reichweite von  $6,2\ \mu$  beobachten müssen.

$Nd^{144}$ : Eine Kernplatte wurde mit „Neodym 144“ imprägniert ( $0,34\text{ mg } Nd^{144}/\text{cm}^2$  60 Tage). Die Abb. 5 zeigt die Spurenverteilung in dieser Platte. Man beobachtet 2 Maxima bei  $6,2$  und  $7,2\ \mu$ . Wir nehmen an, daß das erste Maximum einer  $\alpha$ -Aktivität des  $Nd^{144}$  zuzuschreiben ist. Das 2. Maximum rührt von einer schwachen  $Sm^{147}$ -Verunreinigung (ca.  $2 \cdot 10^{-3}\%$ ) her. Eine genaue Trennung in die beiden Komponenten ist wegen des geringen Unterschieds der Reichweiten schwierig.

Nimmt man nach Tab. 5 eine Verunreinigung an  $Sm^{147}$  von  $0,0013\%$  in der Probe „ $Nd^{144}$ “ an, so würden diese unter den vorliegenden Bedingungen etwa 30 Spuren geben. Von den insgesamt 135 beobachteten Spuren wären also 105 dem  $Nd^{144}$  zuzuschreiben. Dies ergibt eine Halbwertszeit von  $2,2 \cdot 10^{15}$  Jahren. Die Fehlergrenze dürfte etwa  $30\%$  betragen.

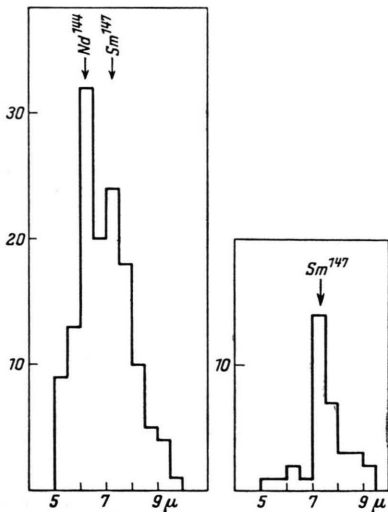


Abb. 5.  $1,4\text{ cm}^2$  mit  $0,56\text{ mg } Nd^{144}$ ; 60 Tage.

Abb. 6.  $1,3\text{ cm}^2$  mit  $0,26\text{ mg } Nd^{146}$ ; 22 Tage.

Ein Vergleich des Ergebnisses mit dem natürlichen Neodym zeigt, daß mindestens der Hauptanteil der  $Nd$ -Aktivität dem Isotop 144 zuzuschreiben ist. Bei den verhältnismäßig hohen Fehlergrenzen

zen ist es nicht ausgeschlossen, daß die ganze Aktivität von diesem Isotop herrührt. Versuche mit den benachbarten ungradzahligen Isotopen des Neodyms sind in Vorbereitung.

$Nd^{146}$ : Eine weitere Platte wurde mit angereichertem  $Nd^{146}$  ( $87,6\%$ ) imprägniert (Abb. 6).

Man findet eine Spurengruppe mit einer mittleren Reichweite von  $7,3 \pm 0,14\ \mu$ ; offensichtlich handelt es sich hierbei um eine  $Sm^{147}$ -Verunreinigung. Die Anzahl der Spuren stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit der aus dem  $Sm$ -Gehalt (ca.  $0,01\%$   $Sm^{147}$ ) zu erwartenden überein, so daß für  $Nd^{146}$  keine Aktivität nachgewiesen ist.

### Wolfram

Beim Wolfram wurde ein schwacher Effekt gefunden<sup>27</sup>. Die Platten waren mit Natrium-Wolframat bzw. Kalium-Wolframat getränkt worden. Die Lagerung dauerte 2–4 Monate. Insgesamt wurden  $13\text{ cm}^3$  Emulsion durchmustert (Abb. 7). Im Intervall  $8-13\ \mu$  wurde eine Gruppe von 25 Spuren mit einer mittleren Reichweite von  $10,7 \pm 0,24\ \mu$  beobachtet, das entspricht einer Energie von  $3,0\text{ MeV}$ . Der Fehler dürfte etwa  $7\%$  betragen. Die Zerfallskonstante hat den Wert  $3,1 \cdot 10^{-18}/\text{Jahr}$ . Daraus errechnet sich als Halbwertszeit:  $T = \alpha \cdot 2,2 \cdot 10^{17}$  Jahre ( $\alpha$  = Häufigkeit des aktiven Isotops).

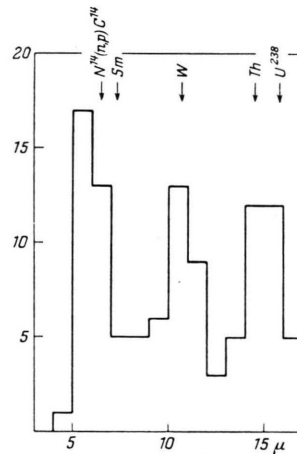


Abb. 7.  $13\text{ cm}^2$  mit  $13,6\text{ mg }$  Wolfram;  $1240\text{ mg} \cdot \text{Tage}$ .

Es wurde zunächst vermutet, daß ein sehr seltenes, bisher unbekanntes Wolfram-Isotop Träger der Aktivität sein sollte. Um diese Vermutung zu prü-

<sup>27</sup> W. Porschen u. W. Riezler, Z. Naturforschg. 8a, 502 [1953].

fen, baten wir Herrn Dr. M. L. Smith in Harwell, auch an den Stellen, wo die Masse 178 und 179 zu erwarten wären, im Massenseparator Auffänger aufzustellen. Wir haben daraus Präparate hergestellt, die das betreffende Isotop enthalten mußten. Das Ergebnis war jedoch negativ. Weitere Versuche mit dem abgetrennten Isotop 180 sind noch im Gange.

### Platin

Eine deutliche Aktivität wurde beim Platin beobachtet<sup>22</sup>. Zum Imprägnieren der Platten wurde Kaliumtetracyanoplatinat ( $K_2Pt(CN)_4$ ) benutzt, das aus  $K_2PtCl_4$  (Merck) und KCN hergestellt worden war. Das Platinkaliumchlorid ist nach Angaben des Herstellers frei von Osmium und enthält höchstens 0,05% Iridium. Platin-IV-Kaliumchlorid führt zu einer Desensibilisierung der Emulsion; Kaliumtetracyanoplatinat stört die Bildung des latenten Bildes nicht, da dieser Komplex sehr stabil ist.

Die Platten (0,15 mg Pt/cm<sup>2</sup> bzw. 0,4 mg Pt/cm<sup>2</sup> Emulsion) wurden 17–52 Tage gelagert. Zum Vergleich dienen Platten, die mit Kalium-Osmiat bzw. Iridiumkaliumcyanid getränkt worden waren (Abb. 3 u. 4).

In den Platinplatten (Abb. 8) findet man außer den „normalen“ Spuren eine neue Gruppe von 96 Spuren mit einer mittleren Reichweite von 11,7  $\mu$ ; das entspricht einer Energie von  $3,3 \pm 0,2$  MeV. Aus der Zerfallskonstanten

$$(\lambda = 8,5 \cdot 10^{-17}/\text{Jahr})$$

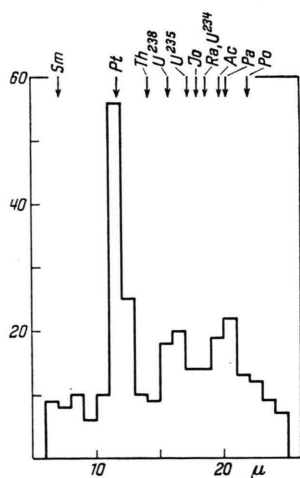


Abb. 8. 15,4 cm<sup>2</sup> mit 5,5 mg Platin; 187 mg · Tage.

<sup>22</sup> T. P. Kohman, Phys. Rev. 73, 21 [1948].

<sup>29</sup> E. P. Hincks u. C. H. Millar, Proc. Roy. Soc. Can. (3) 46, 143 A [1952].

findet man die Halbwertszeit  $T = \alpha \cdot 8 \cdot 10^{15}$  Jahre. Der Fehler beträgt etwa 50%.

Da im allgemeinen (außer in der Gegend von 82 und 126 Neutronen) die Isotope mit der kleinsten Massenzahl gegenüber  $\alpha$ -Zerfall die größte Instabilität besitzen, ist anzunehmen, daß  $Pt^{190}$  das aktive Isotop ist. Es wurde schon von Kohman<sup>28</sup> in einer Arbeit über  $\beta$ -Stabilität vermutet, daß  $Pt^{190}$  ein  $\alpha$ -Strahler sein könnte. Man berechnet für dieses Isotop ( $\alpha = 0,012$ ) eine Halbwertszeit von  $10^{12}$  Jahren. Nach der Gamow-Formel gehört hierzu eine Energie von 3,1 MeV in Übereinstimmung mit dem experimentellen Wert von  $3,3 \pm 0,2$  MeV. Die Spurenverteilung zeigt noch ein ganz schwaches Maximum bei etwa 9  $\mu$ . Die geringe Zahl der in diesem Maximum beobachteten Spuren reicht allerdings noch nicht aus um sicherzustellen, daß es reell ist. Macht man die Annahme, daß es sich um eine Aktivität von  $Pt^{192}$  handelt, so hätte dieses Isotop eine Halbwertszeit in der Größenordnung  $10^{15}$  Jahre und eine Zerfallsenergie von etwa 2,6 MeV.

### Wismut

Die erste Untersuchung des Wismuts mit Hilfe von Kernplatten wurde von Jenkner und Broda<sup>6</sup> durchgeführt. Sie fanden keinen Effekt und schlossen daraus, daß die Halbwertszeit größer als  $3 \cdot 10^{15}$  Jahre ist.

Hincks und Millar<sup>29</sup> konnten beim Wismut keinen Effekt beobachten. Sie lagerten die Platten 3,1 Jahre lang, was zu einem relativ starken Fading führte. Sie finden keine Spuren im Intervall von 2–3,2 MeV. Dabei ist zu berücksichtigen, daß kurze Spuren (5–10  $\mu$ ), deren Korndichte durch Fading vermindert ist, sehr schwer zu erkennen sind.

Wir konnten beim Wismut eine schwache  $\alpha$ -Aktivität beobachten<sup>30</sup>. C2-Platten wurden mit Wismut-ammoniumcitratlösung (2–4%) imprägniert und dann 100 bzw. 180 Tage gelagert. In 7 cm<sup>2</sup> Emulsion wurde eine Gruppe von 12 Spuren mit einer mittleren Reichweite von  $9,8 \pm 0,3 \mu$  gefunden; das entspricht einer Energie von  $3,0 \pm 0,2$  MeV (Abb. 9).

Diese Spuren können nicht von radioaktiven Verunreinigungen herrühren, da es keinen natürlichen  $\alpha$ -Strahler mit einer Energie von 3,0 MeV gibt.

<sup>30</sup> W. Riezler u. W. Porschen, Z. Naturforschg. 7a, 634 [1952].



Aus der Zahl der eingelagerten Wismutatome ( $\text{Bi}^{209}$ ) und der Spurenzahl findet man als Zerfallskonstante  $\lambda = 3,4 \cdot 10^{-18}/\text{Jahr}$ . Daraus ergibt sich als Halbwertszeit

$$T = 2 \cdot 10^{17} \text{ Jahre } (\pm 50\%) .$$

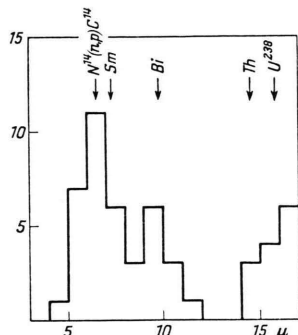


Abb. 9. 7,9 cm<sup>2</sup> mit 3,0 mg Wismut; 360 mg · Tage.

In guter Übereinstimmung mit diesem Ergebnis sind die Resultate von Faraggi und Berthelot<sup>31</sup>, die ihre wismutgetränkten Platten 2 Jahre lang gelagert hatten. Sie fanden

$$3,15 \text{ MeV und } 2,7 \cdot 10^{17} \text{ Jahre} .$$

### Diskussion der Ergebnisse

Im Bereich der  $\alpha$ -Strahler mit Massenzahlen über 200 zeigen die gefundenen Zerfallsenergien einen sehr übersichtlichen Gang mit der Masse und Ladung der betreffenden Kerne<sup>32</sup>. Die Werte für Isotope des gleichen Elementes liegen angenähert auf geraden Linien, nur beim Überschreiten magischer Zahlen zeigen sich grobe Abweichungen. Dies bedeutet, daß das Energietal einigermaßen gleichmäßig ansteigt, einen parabolischen Querschnitt hat und keine starken Krümmungen in der  $N - Z$ -Ebene aufweist. Man kann nun versuchen, trotz des wesentlich geringeren Beobachtungsmaterials für das Gebiet der Massenzahlen 140 bis 200 ein ähnliches Schema zu zeichnen. Wesentliche Anhaltspunkte liefern dabei die künstlichen  $\alpha$ -Strahler im Gebiet des Samariums. Außerdem ist die Lage der Kerne, die in der Sohle des Energietales liegen, praktisch also der ungeraden Kerne, wenigstens näherungsweise aus dem Ansteigen der Packungsdefektkurve in Abb. 1 zu bestimmen. Mit diesen Anhaltspunkten ist in Abb. 10 ein derartiges Schema dargestellt. Nach diesem Schema sollte der größte Teil der „stabilen“

Kerne mit den Massenzahlen 150 und 200 in Wirklichkeit gegen  $\alpha$ -Zerfall instabil sein, im allgemeinen jedoch mit so kleiner Zerfallsenergie und entsprechend der Gamow-Formel mit so langer Halbwertszeit, daß der Zerfall praktisch nicht beobachtet werden kann. Nur die jeweils leichtesten Isotope eines Elementes liegen im allgemeinen über der punktierten Linie, die  $10^{15}$  Jahren Halbwertszeit entspricht. Besonders in der Platingruppe sollten nach unserer Zeichnung relativ hohe Energiewerte für einen  $\alpha$ -Zerfall auftreten. Die Energiedifferenz zwischen  $\text{Pt}^{190}$  und dem nächsten Platin-Isotop 192 sollte nach unserer Zeichnung etwa 0,5 MeV betragen. Dies läßt den Schluß zu, daß auch das schwache Maximum in der Spurenverteilung von Platin bei  $9 \mu$  reell ist und dem Isotop  $\text{Pt}^{192}$  zugeordnet werden muß.

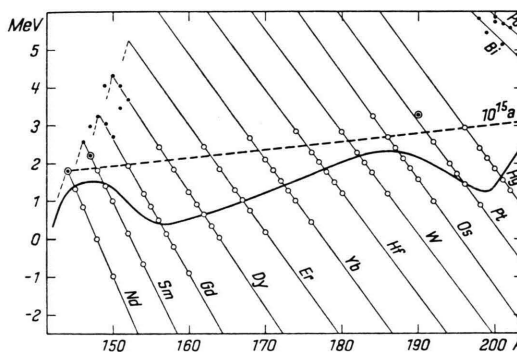


Abb. 10. Schematische Darstellung der Energiewerte für  $\alpha$ -Zerfall. Die ausgezogene Kurve stellt die aus dem Verlauf der Packungsdefektkurve berechnete Zerfallsenergie für Isotope nahe der Sohle des Energietals dar. Die gestrichelte Linie entspricht einer Halbwertszeit von  $10^{15}$  Jahren. Punkte: gemessene Zerfallsenergien, Kreise: aus dem Schema abzulesende Schätzwerte für natürliche Isotope. — Für Elemente mit ungerader Ordnungszahl sind die natürlichen Isotope nicht eingezeichnet.

Die beobachtete Aktivität bei  $\text{Nd}^{144}$  paßt sehr gut in das gezeichnete Schema. Der Nachweis des Isotops 144 als verantwortlich für die  $\alpha$ -Aktivität des Nd ist ein neuer Beweis für die gute Brauchbarkeit des Schalenmodells.

Der eine von uns dankt der Deutschen Forschungsgemeinschaft für ein Stipendium. Ferner danken wir dem Ministerium für Wirtschaft und Verkehr des Landes Nordrhein-Westfalen für die Bereitstellung von Mitteln.

Ganz besonderer Dank gebührt Fräulein I. M. Franke, Fräulein P. Menzerath und Fräulein R. Stadler für die sehr sorgfältige Durchmusterung der Platten.

<sup>31</sup> H. Faraggi u. A. Berthelot, C. R. Acad. Sci. Paris **232**, 2093 [1951].

<sup>32</sup> I. Perlman, A. Ghiorso u. G. Th. Seaborg, Phys. Rev. **77**, 26 [1950].