

stufe II auf Grund von Messungen der gespeicherten Energie eine ähnliche Feinstruktur fand wie sie bereits HENDERSON und KOEHLER<sup>28</sup> an Kupfer beobachtet hatten. In beiden Metallen treten während des Anlassens drei deutliche Maxima der Energieabgabe unterhalb Stufe III auf, deren Ursachen jedoch noch nicht recht verstanden sind. Auf Grund der Messungen von MARTIN<sup>29</sup> an elektronenbestrahltem Kupfer muß in Stufe II mit einer starken Wechselwirkung zwischen Fehlstellen und Fremdatomen gerechnet werden. Die isochrone Erholung des elektrischen Widerstandes ergab zwischen  $-150^{\circ}\text{C}$  und

Stufe III drei Erholungsmaxima, deren Absoluthöhe und Temperaturlage durch kleine Zusätze von Silber, Cadmium und Beryllium beeinflusst wurden. Weitere Untersuchungen müssen ergeben, ob zwischen dieser Feinstruktur der Stufe II und den von VAN DEN BEUKEL<sup>27</sup> und HENDERSON und KOEHLER<sup>28</sup> beobachteten Maxima der Energieabgabe eine Beziehung besteht.

Die vorliegende Arbeit wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft im Rahmen des Schwerpunktprogramms Metallphysik unterstützt, wofür die Autoren auch an dieser Stelle danken möchten.

<sup>28</sup> J. W. HENDERSON u. J. S. KOEHLER, Phys. Rev. **104**, 626 [1956].

<sup>29</sup> D. G. MARTIN, Phil. Mag. **6**, 839 [1961].

## Untersuchungen der Struktur von Spaltproduktschwaden

Von H. MÜH und A. SITTKUS

Aus dem Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg; Außenstelle Freiburg-Schauinsland  
(Z. Naturforsch. **17 a**, 235–238 [1962]; eingegangen am 26. Januar 1962)

After the stop of the atomic bomb tests in October 1958 samples of fission products have been collected from air and investigated by autoradiographic methods. The blackening spots were measured and the frequency distribution of the particles was determined over the range of  $2 \cdot 10^{-12}$  Curie down to  $0.5 \cdot 10^{-14}$  Curie. In relation to the total activity of fission products the number of particles containing  $2 \cdot 10^{-12}$  Curie decreased quickly, while that of particles smaller than  $10^{-13}$  Curie became constant after a rapid initial drop.

Untersuchungen an Spaltprodukten zeigten, daß in den von atomtechnischen Versuchen stammenden Explosionswolken noch lange Zeit nach der Detonation radioaktive Partikel mit Aktivitäten bis über  $10^{-11}$  Curie-Teilchen („heiße“ Teilchen) vorkommen<sup>1</sup>. Zur Ergänzung der Kenntnisse wurden seit Oktober 1958 auf dem Schauinsland bei Freiburg ( $48^{\circ}\text{N}$ ,  $8^{\circ}\text{E}$ , 1200 m über N.N.) systematische Untersuchungen der Struktur der Spaltproduktschwaden durchgeführt.

Luft wurde aus 2 m Höhe über dem Erdboden entnommen, durch Aerosolfilter (Membranfilter Gruppe 1 der Membranfiltergesellschaft Göttingen) gesaugt und dadurch das radioaktive Spaltproduktaerosol auf einer Fläche von  $170\text{ cm}^2$  quantitativ abgeschieden. Die Probennahme dauerte jeweils 2–5 Tage, dabei wurden Luftmengen von 6000 bis  $10\,000\text{ m}^3$ /Probe erfaßt. Wegen der kleinen Eindringtiefe der Aerosolteilchen in die Filter<sup>2</sup> und des kleinen Staubgehaltes der Luft an der Station waren am Ende der Probennahme praktisch alle Spaltproduktanteile in einer  $2-3\text{ mg/cm}^2$  dicken

Schicht an der Oberfläche der Filter eingebettet. Die Filter wurden auf feste Unterlagen aufgezogen, mit „Hostaphan“-Folie von  $10\text{ }\mu$  Stärke (etwa  $1,4\text{ mg/cm}^2$ ) abgedeckt und zur Herstellung von Autoradiographien mit RÖNTGEN-Filmen (Kodirex) in Kontakt gebracht. Die Filme wurden maximal 27 Tage lang belichtet. Nach der unter konstanten Bedingungen vorgenommenen Entwicklung ergaben die Autoradiographien die Verteilung der  $\beta$ -Strahlen aussendenden Teilchen des aus der Luft aufgefangenen Spaltproduktaerosols.

In Übereinstimmung mit anderen Untersuchungen<sup>1</sup> zeigen die Autoradiographien, daß sowohl die Zahl und die Größenverteilung der „heißen“ Teilchen als auch die Schwärzung des Untergrundes durch sehr viele kleine nicht mehr einzeln erkennbare Teilchen von Filter zu Filter variiert. Die Auswertung erfolgte dementsprechend nach 2 Gesichtspunkten. Die einzeln erkennbaren Teilchen wurden ausgezählt und in Größenklassen sortiert, die nicht in Einzelteilchen auflösbare Untergrundschwärzung durch Spaltprodukte wurde photometrisch bestimmt.

Als Maß für die Größe der Aktivität der Einzelteilchen wurde der unter einem Meßmikroskop relativ ein-

<sup>1</sup> Literatur z. B. in „Radioaktive Partikel“, Kolloquium des „Sonderausschuß Radioaktivität“, Schriftenreihe des Bun-

desministers für Atomenergie und Wasserwirtschaft, Heft 12, Verlag Gersbach u. Sohn, Braunschweig 1959.

<sup>2</sup> K. BACKHEUER, Diplomarbeit, Freiburg 1960.



fach bestimmbare Durchmesser der Schwärzungsflecke gewählt. Da die Schwärzung eines Fleckes zum Rande hin abnimmt und der Durchmesser bei dieser Methode durch Verschwinden der Schwärzung im Untergrund definiert ist, wird die Größenbestimmung abhängig von der Kontrastschwelle des Auges des Beobachters. Kontrollauswertungen zeigten, daß die Bestimmung der Durchmesser auf etwa 10% reproduzierbar war. Zur Umrechnung des Schwärzungsdurchmessers auf die während der Belichtungszeit erfolgte Zahl der Zerfälle im heißen Teilchen wurde der verwendete RÖNTGEN-Film mit künstlich erzeugten aktiven Teilchen geeicht. Beim Zerstäuben einer Cs-137/Ba-137-Lösung über einer Folie mit feinen Löchern wurden auf einem Membranfilter radioaktive Flecke von 20–30  $\mu$  Durchmesser erzeugt, deren Autoradiographien denen der „heißen“ Teilchen glichen. Die stärksten künstlichen Teilchen wurden mit einem  $\beta$ -Zählrohr gemessen und ihre Zerfallsrate absolut bestimmt. Die Zahl der Zerfälle der übrigen Teilchen wurde aus dem Vergleich von Autoradiographien mit verschiedenen langer Belichtungszeit ermittelt. Im Bereich von etwa  $10^3$  bis zu  $10^6$  Zerfällen pro RÖNTGEN-Filmbelichtung (das entspricht Schwärzungsflecken von 150 bis 3000  $\mu$  Durchmesser und bedeutet bei einer Belichtungsdauer von 27 Tagen Teilchenaktivitäten zwischen  $1,2 \cdot 10^{-14}$  und  $1,2 \cdot 10^{-11}$  Curie) ergab sich zwischen Schwärzungsfleckdurchmesser und  $\beta$ -Zerfallsrate mit Cs-137/Ba-137 als Eichstrahler in guter Näherung die empirische Eichfunktion

$$N = 1,32 \cdot 10^{-2} d^{2,26},$$

( $N$  Zahl der Zerfälle und  $d$  Durchmesser des Schwärzungsfleckes in  $\mu$ ). Bei 27-tägiger Belichtung lag die Grenze der Nachweismöglichkeit von Einzelteilchen bei  $5 \cdot 10^{-15}$  Curie entsprechend einem Schwärzungsfleckdurchmesser von etwa 100  $\mu$ . Die Genauigkeit der Aktivitätsbestimmung betrug etwa 20%.

Aus der Untergrundschwärzung  $S$  der RÖNTGEN-Filme, die von vielen kleinen, nicht mehr einzeln erkennbaren Spaltproduktteilchen herrührt,

$$S = \log(I_0/I_G)$$

( $I_0$  Intensität des Lichtes nach dem Durchgang durch ein nicht bestrahltes Filmstück und  $I_G$  Intensität des Lichtes nach dem Durchgang durch den bestrahlten Film) läßt sich die Zahl der während der Belichtung erfolgten  $\beta$ -Zerfälle pro  $\text{cm}^2$  des Präparates ( $D$ ) aus

$$D = \alpha S$$

ermitteln<sup>3</sup>. Zur Bestimmung des Proportionalitätsfaktors wurde die Gelatineschicht von ausfixierten Rollfilmen (diese entspricht etwa einer Absorberschicht von 3  $\text{mg}/\text{cm}^2$ ) in Cs-137/Ba-137-Lösungen verschiedener Stärke gleichmäßig mit Cs-137/Ba-137 beladen. Aus der von den Eichfeldern erzeugten RÖNTGEN-Filmschwär-

zung und der mit einem geeichten Zählrohr gemessenen Aktivität berechnet sich der Proportionalitätsfaktor  $\alpha$  zu  $1,14 \cdot 10^7 \pm 3,5\%$  mit Cs-137/Ba-137 als Eichsubstanz im Bereich bis etwa  $S=2$ . Die untere Meßgrenze des verwendeten Photometers lag bei  $S=0,02$ , das entspricht bei den verarbeiteten Luftmengen und 27 Tagen Belichtungszeit einer fein verteilten Spaltproduktaktivität von etwa  $5 \cdot 10^{-14}$  C/ $\text{m}^3$ .

Von zehn der auf dem Schauinsland gesammelten Luftfilterproben wurden genauere Analysen durchgeführt. Die Zeiten der Probennahmen sind in Tab. 1, Spalte 2, zusammengestellt. Sämtliche Proben sind zwischen Dezember 1958 und Februar 1960 gewonnen. In dieser Zeit erfolgten keine oberirdischen Kernwaffentests. Die Untersuchung erfaßte daher die im Beobachtungszeitraum eingetretenen Veränderungen des in der Atmosphäre enthaltenen Spaltproduktes, das überwiegend von den zahlreichen großen Versuchsexplosionen im Herbst 1958 stammte, das aber sicher auch noch alte Spaltproduktanteile von weiter zurückliegenden Explosionen enthielt. Die ausgewerteten Radiographien wurden überwiegend Ende 1959, also etwa 1 Jahr nach dem Versuchsstop, angefertigt (Tab. 1, Spalte 3). Wegen des dann nur noch schwachen zeitlichen Abfalles der Spaltprodukte spielen kleine Zeitdifferenzen im Termin der Anfertigung keine Rolle mehr, und die Ergebnisse der Auswertungen verschiedener Proben sind mit einer Unsicherheit von 10% direkt vergleichbar.

In der Abb. 1 sind die relativen Größenverteilungen der Schwärzungsflecke der Proben Nr. 1 und Nr. 8 dargestellt. Für jede Verteilung wurden etwa 1000 Flecke vermessen. Die Darstellung zeigt, daß in den zu verschiedenen Zeiten aufgefangenen Proben Partikel vorkamen, deren Aktivität etwa 1 Jahr nach der Explosion noch über  $2 \cdot 10^{-12}$  Curie betrug. Unter der Annahme, daß für die „heißen“ Teilchen dasselbe Abklinggesetz wie für das Gesamtspaltproduktgemisch gilt<sup>4</sup>, ergibt sich, daß zum Zeitpunkt der Probennahme der Proben Nr. 1 (etwa 2 Monate nach der letzten Explosion im Jahre 1958) noch Teilchen mit mehr als  $2 \cdot 10^{-11}$  Curie vorhanden waren. Aus der Aktivität läßt sich eine Abschätzung der Spaltproduktmasse „heißer“ Teilchen durchführen. Nach BHABHA und Mitarbeitern<sup>5</sup> haben 1000 kg

<sup>3</sup> JOOS-SCHOPPER, Grundriß der Photographie und ihre Anwendung besonders in der Atomphysik, Akadem. Verlagsges. Frankfurt 1958.

<sup>4</sup> Die bisher durchgeführten Messungen<sup>1</sup> und die im Rahmen der Arbeit angestellten Untersuchungen zeigen, daß die

Zusammensetzungen der Teilchen nicht so wesentlich von der mittleren Spaltproduktzusammensetzung abweicht, daß die Anwendung des  $T^{-1,2}$ -Zeitgesetzes sinnlos ist.

<sup>5</sup> H. BHABHA und Mitarbeiter, Nuclear Explosions and their Effects; deutsch: Atom, Aufstieg oder Untergang, Verlag Krauskopf, Wiesbaden 1957.

1 Lfd. Nr.	2 Probennahme	3 Herstellung der Autoradiographie	4 Zahl der Teilchen in 1 m <sup>3</sup> Luft		6 Spaltproduktaktivität in 10 <sup>-12</sup> C/m <sup>3</sup>		7 von fein verteilter Aktivität
			mit > 2 · 10 <sup>-12</sup> Curie	mit ≥ 0,5 · 10 <sup>-14</sup> Curie	von Teilchen ≥ 0,5 · 10 <sup>-14</sup> Curie	von Teilchen ≥ 0,5 · 10 <sup>-14</sup> Curie	
1	13. 12. — 15. 12. 58	22. 1. — 18. 2. 60	0,018	0,76	0,14	0,24	
2	28. 12. — 31. 12. 58	28. 9. — 26. 10. 59	0,014	1,02	0,062	0,51	
3	31. 12. 58 — 4. 1. 59	28. 9. — 26. 10. 59	0,015	1,27	0,12	0,65	
4	12. 2. — 17. 2. 59	28. 10. — 24. 11. 59	0,0045	4,23	0,41	4,33	
5	28. 3. — 4. 4. 59	28. 10. — 24. 11. 59	—	3,58	0,25	3,95	
6	3. 5. — 7. 5. 59	28. 10. — 24. 11. 59	—	4,90	—	—	
7	8. 6. — 12. 6. 59	28. 9. — 26. 10. 59	0,0024	1,52	0,089	2,4	
8	1. 7. — 7. 7. 59	20. 11. — 17. 12. 59	—	0,31	—	—	
9	13. 8. — 17. 8. 59	20. 11. — 17. 12. 59	—	0,24	—	—	
10*	6. 2. — 12. 2. 60	31. 3. — 27. 4. 60	—	0,10	0,007	0,10	

\* 1. Sahara-Test 13. 2. 1960

Tab. 1.

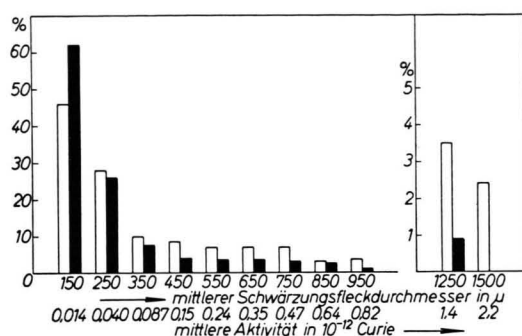


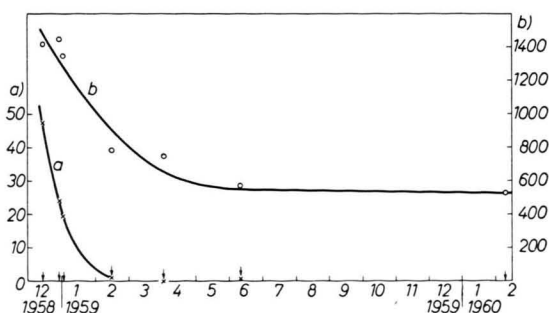
Abb. 1. Größenklassenverteilung „heißer“ Teilchen.

Probe	Probennahme	Autoradiographie
Nr. 1	13. — 15. 12. 1958	22. 1. — 18. 2. 1960
Nr. 8	1. 7. — 7. 7. 1959	20. 11. — 17. 12. 1959

Spaltprodukt ein Jahr nach der Explosion noch eine  $\gamma$ -Aktivität von  $1,1 \cdot 10^8$  Curie. Die  $\beta$ -Aktivität liegt etwa in derselben Größe. Für ein Teilchen mit  $2 \cdot 10^{-12}$  Curie ergibt sich dann eine Spaltproduktmasse von ungefähr  $2 \cdot 10^{-14}$  g (das entspricht einer Zusammenballung von etwa  $10^8$  Atomen). Die durchgeführte Abschätzung ist wegen der Unsicherheiten der Messung und der sonst verwendeten Werte ungenau. Da sie nur von der Spaltproduktaktivität ausgeht und evtl. angelagertes anderes Material vernachlässigt, dürfte der angegebene Wert trotzdem eine brauchbare Abschätzung der Mindestteilchenmasse ein. Für kugelförmige Teilchen errechnet sich aus der Masse der Teilchendurchmesser zu  $0,17$  bzw.  $0,34 \mu$  für Partikel der Dichte  $8$  bzw.  $1 \text{ g/cm}^3$ . Mikroskopische Untersuchungen „heißer“ Teilchen ähnlicher Aktivität durch SCHEDLING und MÜLLER<sup>1</sup> ergaben, daß die radioaktiven Partikel sicher kleiner als  $1 \mu$  waren. Daher scheint der Schluß berechtigt,

daß es sich bei den erfaßten Teilchen um Partikel von einigen  $1/10 \mu$  handelt.

Aus den Fleckgrößenverteilungen der Abb. 1 ist zu entnehmen, daß die Zahl der großen Schwärzungsflecke in der später aus der Luft gewonnenen Spaltproduktprobe Nr. 8 kleiner ist als im Filter Nr. 1. Spalte 4 in Tab. 1 gibt die Werte der Zahl der großen Teilchen in den verschiedenen Proben wieder. Die Häufigkeit nimmt im Laufe der Zeit dauernd ab, trotzdem die Spaltproduktaktivität im Frühjahr 1959 einen starken Anstieg zeigt (z. B. Spalte 7 der Tab. 1). Bezogen auf gleiche Gesamtspaltproduktaktivität ergibt sich, daß die „heißer“ Teilchen mit mehr als  $2 \cdot 10^{-12}$  Curie (zum Zeitpunkt der Messung) mit einer Halbwertszeit von etwa  $15 - 20$  Tagen aus der Atmosphäre verschwunden sind (Kurve a der Abb. 2). Dieses Ergebnis ist in qualitativer Übereinstimmung mit dem Befund von SCHEDLING und MÜLLER<sup>1</sup>, die bei der Frühjahrstestserie 1958 von April bis in den Juli große, „heißer“ Teilchen

Abb. 2. Zeitliche Abnahme der relativen Häufigkeit heißer Teilchen für Partikel über  $2 \cdot 10^{-12}$  Curie (a) und unter  $10^{-13}$  Curie (b). Ordinate: Teilchen je  $10^{-9}$  Curie.

fanden, im September und Oktober bis zum Beginn neuer Versuchsserien aber nicht. Die Häufigkeit aller ausgezählten Teilchen ( $\geq 0,5 \cdot 10^{-14}$  Curie pro Teilchen zum Zeitpunkt der Messung) verläuft im Beobachtungszeitraum gleichsinnig wie die Intensität der Spaltprodukte, welche die Untergrundschwärzung der Filme verursacht (Spalte 5 und 7 der Tab. 1). Bezogen auf gleiche Gesamtsplattproduktaktivität zeigt sich aber auch für die kleinen Teilchen (Kurve b der Abb. 2), daß ihr Anteil bis März 1959 auf etwa die Hälfte abgenommen hat, um danach bis Februar 1960 einigermaßen konstant zu bleiben (s. dazu auch SCHUMANN<sup>1</sup> mit z. Tl. abweichenden Ergebnissen).

Die Abscheidung von Teilchen aus der Atmosphäre erfolgt durch das Zusammenwirken verschiedener Faktoren, wie Sedimentation, Vertikalaustausch, Einbau bei der Bildung von Regentropfen und Auswaschen beim Fall der Tropfen. Dabei beträgt die Verweilzeit für Teilchen unter  $1 \mu$  (für diese ist die Sinkgeschwindigkeit so klein, daß die Sedimentation keine wesentliche Rolle mehr spielt) im Bereich der Troposphäre im Mittel wenige Wochen<sup>6</sup>, in der Stratosphäre mehrere Monate<sup>7</sup>. Die Deutung des schnellen Verschwindens der Teilchen mit Aktivitäten um  $2 \cdot 10^{-12}$  Curie (zum Zeitpunkt der Messung) scheint daher nur möglich mit der Annahme, daß diese Teilchen überwiegend in der Troposphäre entstanden und verblieben sind. Die

Gründe dafür sind in den Vorgängen bei der Explosion zu suchen, über die keine genügend genauen Angaben verfügbar sind. Deshalb können nur einige plausible Gesichtspunkte zur Erklärung angeführt werden. Zur Bildung der großen aktiven Teilchen sind etwa  $10^8$  Spaltproduktatome notwendig. Die Zusammenballung so vieler Atome wird um so mehr begünstigt sein, je höher die Dichte des Spaltproduktgases ist. Daher besteht die Möglichkeit, daß bei einer Explosion in Erdnähe kurz nach der Detonation in den Randzonen des Feuerballes größere Teilchen gebildet werden als in den späteren Phasen des Aufstieges und der Expansion der Explosionswolke. Dies bedeutet, daß sich die Größenverteilung der erzeugten „heißen“ Teilchen beim Aufsteigen in der Atmosphäre laufend verändert, und daß in der unteren Luftschicht ein Teilchenspektrum mit einem relativ höheren Anteil aktiverer Teilchen als in der oberen Atmosphäre entsteht. Wegen der verschiedenen Verweilzeit in der Tropo- und Stratosphäre verschwindet das Spektrum mit den größten Teilchen zuerst aus der Luft und es stellt sich allmählich auch in der Troposphäre das Teilchenaktivitätsspektrum der hohen Atmosphäre ein.

Die Arbeit wurde aus Mitteln der Schutzkommission der Deutschen Forschungsgemeinschaft gefördert. Wir danken Herrn Prof. W. GENTNER und Herrn Prof. Th. SCHMIDT für die ständige Unterstützung bei der Untersuchung.

<sup>6</sup> Literatur z. B. bei L. LEHMANN u. A. SITTKUS, Naturwiss. 46, 9 [1959].

<sup>7</sup> z. B. H. W. FEELY u. Y. SPAR, Mixing and Transfer within the Stratosphere, Report on the Dasa High Altitude Sampling Program, Dasa 1222, 31. 12. 1960.

## Durch 14 MeV-Neutronen ausgelöste $(n, \alpha)$ -Reaktionen in $\text{Si}^{28}$ und $\text{Si}^{29}$

Von G. ANDERSSON-LINDSTRÖM

Aus dem Physikalischen Staatsinstitut, I. Institut für Experimentalphysik, Hamburg  
(Z. Naturforsch. 17 a, 238—241 [1962]; eingegangen am 11. Januar 1962)

Herrn Prof. Dr. H. NEUERT zum 50. Geburtstag gewidmet

Ein Si-Halbleiterzähler wurde mit Neutronen einer Energie von 14,1; 14,4 und 14,6 MeV beschossen und das dabei im Zähler selbst auftretende  $\alpha$ -Spektrum aus der Reaktion  $\text{Si}^{28}(n, \alpha)\text{Mg}^{25}$  registriert. Für die Übergänge zu angeregten Niveaus des  $\text{Mg}^{25}$  wurde dabei ein Anregungsenergiebereich von 0 bis 6 MeV ausgemessen. Von der Reaktion  $\text{Si}^{29}(n, \alpha)\text{Mg}^{26}$  wurde der Übergang zum Grundzustand und zum ersten angeregten Zustand registriert.

### Experimentelle Methode

Neutronen von 14,1; 14,4 und 14,6 MeV wurden durch die  $\text{T}(d, n)\text{He}^4$ -Reaktion mit einer 100 keV-Beschleunigungsanlage erzeugt. Die Variation der

Neutronenenergie geschah dabei durch Wahl des Winkels zwischen Deuteronenstrahl und Beobachtungsrichtung. Die hauptsächlich geometrisch bedingte Energiebreite der Neutronen betrug etwa 100 keV.