

sieht es hingegen nicht so aus, als ob die gesamte 9,4-Stdn.-Xenon-Aktivität über das 6,6-Stdn.-Jod gebildet würde<sup>7</sup>; allerdings ist der Effekt noch nicht ganz sicher, auf jeden Fall aber äußerst klein. Die Schwierigkeit, einen solchen Effekt nachzuweisen, liegt darin, daß starke Quellen nötig sind, weil die Halbwertszeiten in den allermeisten Fällen für die beabsichtigte Untersuchung äußerst ungünstig sind, so daß nur sehr kurz bestrahlt werden kann.

Die bisher durchgeführten Untersuchungen über die Intensitätsunterschiede bei den einzelnen isobaren Reihen bestätigen im wesentlichen die Ergebnisse der physikalischen Messungen. Einzelne isobare Reihen scheinen gegenüber ihren Nachbarn bevorzugt gebildet zu werden. Vielleicht

ist auch die Energie der die Spaltung auslösenden Neutronen von ausschlaggebender Bedeutung für die Intensitätsverhältnisse der Spaltprodukte. Diese feineren Intensitätsunterschiede nahe benachbarter Reihen vermuteten schon A. Flammersfeld, W. Gentner und A. Jensen<sup>8</sup>. Genauere Angaben können noch nicht gemacht werden, da die Verschiedenheit der Bruchstücke bei der Spaltung der beiden Uranisotope mit langsamen und energiereichen Neutronen die Untersuchung erschwert.

Abschließend möchten wir betonen, daß diese Arbeit nur einen sehr vorläufigen Überblick über die Chemie der Uranspaltung geben soll und daß noch eine große Zahl von Untersuchungen nötig ist, um die vielen Fragen endgültig zu klären.

## K-Einfang beim natürlich aktiven Cassiopeium

VON ARNOLD FLAMMERSFELD

Aus dem Kaiser-Wilhelm-Institut für Chemie, Tailfingen

(Z. Naturforschg. 2a, 86—89 [1947]; eingegangen am 11. Dezember 1946)

Die von dem natürlich aktiven  $^{176}\text{Cp}$  ausgesandte durchdringende Strahlung wurde durch Absorption in Kupfer, Cadmium und Blei untersucht. Außer der bereits bekannten  $\gamma$ -Strahlung von 260 KeV wurde noch eine K-Strahlung gleicher Intensität nachgewiesen. Durch Vergleich mit den Ergebnissen von W. Bothe am 6,8-Tage-Cp wurden beide Strahlungen auf K-Einfang zurückgeführt, so daß auch der Grundzustand  $^{176}\text{Cp}$  dual zerfällt. Der K-Einfang ist  $2 \pm 0,4$ -mal so häufig wie der  $\beta$ -Übergang, so daß die Halbwertszeit des Isotops  $^{176}\text{Cp}$  nur  $\frac{1}{3}$  des von Libby aus der  $\beta$ -Aktivität bestimmten Wertes, nämlich  $2,4 \cdot 10^{10}$  Jahre, beträgt.

### I. Problemstellung

Das Element Cassiopeium besteht aus zwei Isotopen der Massenzahl 175 (Häufigkeit 97,5 %) und 176 (2,5 %)<sup>1</sup>. Auf Grund der Isobarenregeln konnte Mattauch für das letztere Instabilität vorhersagen<sup>2</sup>, worauf Heyden und Wefelmeier<sup>3</sup> dessen Aktivität nachwiesen. Das Isotop 176 zeichnet sich durch einen bemerkenswert hohen Spin  $i \geq 7$  aus<sup>4</sup>, und gelegentlich der Aufstellung der Kernisomerenregeln folgte Mattauch, daß mindestens ein Isomer zu diesem Kern möglich sein müßte<sup>5</sup>. Eine daraufhin

unternommene Untersuchung der durch Neutronen verursachten künstlichen Aktivitäten des Cassiopeiums hatte ergeben, daß die eine Halbwertszeit von 6,8 Tagen vom Isomer zum natürlich aktiven  $^{176}\text{Cp}$  herrührt<sup>6</sup>.

Anlässlich dieser Untersuchung konnten Flammersfeld und Mattauch auch eine mit der natürlichen Aktivität verbundene  $\gamma$ -Strahlung der Energie 0,260 MeV auffinden, als deren Ursprung entweder K-Einfang (also dualer Zerfall des  $^{176}\text{Cp}$ ) oder komplexer  $\beta$ -Zerfall vermutet wurde.

Neuerdings wurden die Strahlungen künstlich erzeugter Cp-Isotope von Bothe mit stärkeren

<sup>1</sup> J. Mattauch u. H. Lichtblau, Z. Physik **111**, 514 [1939].

<sup>2</sup> J. Mattauch, Naturwiss. **25**, 812 [1937].

<sup>3</sup> M. Heyden u. W. Wefelmeier, Naturwiss. **26**, 612 [1938].

<sup>4</sup> H. Schüler u. H. Gollnow, Z. Physik **113**, 1 [1939].

<sup>5</sup> J. Mattauch, Z. Physik **117**, 246 [1941].

<sup>6</sup> A. Flammersfeld u. J. Mattauch, Naturwiss. **31**, 66 [1943]; Halbwertszeit nach W. Bothe<sup>7</sup>.

Präparaten genauer untersucht<sup>7</sup>. Bothe wies nach, daß der 6,8-Tage-Körper außer der bekannten  $\beta$ -Strahlung noch eine Röntgenstrahlung von ungefähr 60 keV und eine  $\gamma$ -Strahlung von rund 200 keV aussendet. Um über den Ursprung dieser interessanten Strahlen Klarheit zu erhalten, führten Bothe und Maier-Leibnitz<sup>8</sup> Koinzidenzbeobachtungen durch und stellten fest, daß sowohl die 60-keV- wie die 200-keV-Strahlung nicht mit der  $\beta$ -Strahlung des 6,8-Tage-Körpers gekoppelt sind, daß aber beide unter sich koinzidieren. Daraus ist mit Bothe zu schließen, daß unabhängig von der  $\beta$ -Aktivität noch K-Einfang bei  $^{176}\text{Cp}^*$  auftritt, als deren Folge die K-Strahlung direkt und die  $\gamma$ -Strahlung von dem angeregt zurückbleibenden  $^{176}\text{Yb}$  ausgesendet werden. Da ein solcher dualer Zerfall nach Ausweis der Isotopentabellen nur beim Isotop 176 des Cassiopeiums stattfinden kann, war damit erneut auch die Massenzahl des 6,8-Tage-Körpers festgelegt und dessen bereits oben erwähnte Zuordnung zu einem Isomer des  $^{176}\text{Cp}$  bestätigt.

Es war nun zu vermuten, daß die von Bothe beim angeregten Zustand gefundene  $\gamma$ -Strahlung von rund 200 keV und die von Flammersfeld und Mattauch beim Grundzustand gefundene von 260 keV identisch seien, da die Energieangaben innerhalb der Meßgenauigkeit, die für  $\gamma$ -Strahlen bei Absorptionsmessungen im allgemeinen nicht sehr groß ist, übereinstimmen dürften. Es bestand daher die Möglichkeit, aus der bei der natürlichen Aktivität gefundenen  $\gamma$ -Strahlung auf einen unabhängig von dem  $\beta$ -Zerfall stattfindenden K-Einfang des  $^{176}\text{Cp}$ -Grundzustandes zu schließen, indem diese von demselben angeregt zurückbleibenden  $^{176}\text{Yb}$ -Kern herrühren könnte wie im Fall des  $^{176}\text{Cp}^*$ . Wenn dies der Fall ist, muß sich bei der natürlichen Aktivität außer der  $\gamma$ -Strahlung noch die zugehörige K-Strahlung nachweisen lassen. In den früheren Versuchen konnte eine solche nicht bemerkt werden, weil die Absorptionskurven mit zu starken Absorbieren begannen. Das Ziel der vorliegenden Arbeit war es daher, die durchdringenden Strahlungen der natürlichen Aktivität daraufhin noch einmal zu untersuchen.

## II. Versuchsanordnung

Die genaue Untersuchung der durchdringenden Komponente der natürlichen Cp-Aktivität gestaltet sich wegen der geringen Intensität schwierig und zeitraubend, da jeder Einzelpunkt sehr sorgfältig gemessen werden muß. Die Versuchsanordnung war folgende: Zum Nachweis diente ein Messingzählrohr von 0,1 mm Wandstärke, das senkrecht innerhalb eines starken Bleipanzers montiert war. Das Präparat war zylindrisch um dieses Zählrohr angeordnet und bestand aus einer Messinghülse von 0,1 mm Wandstärke, die mit ca. 5 g  $\text{Cp}_2\text{O}_3$  gefüllt war<sup>9</sup>. In dem Zwischenraum fanden die ebenfalls zylindrischen Absorber Platz. Der Abstand Präparat—Zählrohr wurde aus Intensitätsgründen klein gehalten, so daß die größte zulässige Absorberdicke 4 mm betrug. Das Zählrohr arbeitete mit einem Batterieverstärker<sup>10</sup> in Neher-Harper-Schaltung, der sich für derartige langdauernde Messungen als sehr brauchbar erwies. Es wurden zwei derartige Zählrohranordnungen gleichzeitig betrieben. Wegen der größeren Konstanz wurden nur luftgefüllte Zählrohre verwendet. Als Absorber wurden Blei, Cadmium und Kupfer angewendet. Jeder Einzelmeßpunkt erforderte 3 Tage, indem 24 Stdn. lang Nulleffekt (nur Absorptionsfolie, kein Cp), dann 24 Stdn. mit Cp und wieder 24 Stdn. Nulleffekt gemessen wurden, wobei nur solche Werte Berücksichtigung fanden, für die der Nulleffekt am ersten und dritten Tage innerhalb der statistischen Fehler zusammenfiel. Zahlreiche solcher Einzelmeßpunkte lieferten dann gemittelt einen Meßpunkt der Absorptionskurve. Die Versuchsanordnung wurde auch besonders darauf geprüft, ob ein „Übergangseffekt“, der bei  $\gamma$ -Strahlen leicht auftritt, eine scheinbare weiche Komponente verursachen könnte. Zu diesem Zweck wurden mit derselben Anordnung die Absorptionskurven einiger anderer  $\gamma$ -Strahler aufgenommen, die keine nennenswerte K-Strahlung emittieren. Es ergab sich, daß weder die Absorptionskurven in Blei noch in Kupfer eine derartige Komponente aufwiesen, so daß die weiter unten beschriebenen Ergebnisse beim Cassiopeium

<sup>7</sup> W. Bothe, Nachr. Ges. Wiss. Göttingen. Math. Physik. Kl. [1944], Heft 9, u. Z. Naturforschg. 1, 173 [1946].

<sup>8</sup> M. Maier-Leibnitz, Z. Naturforschg. 1, 243 [1946].

<sup>9</sup> Für die leihweise Überlassung sind wir den HHrn. Dr. Hoernes (Auer-AG.) und Generaldirektor Dr. Feit sehr zu Dank verpflichtet.

<sup>10</sup> A. Flammersfeld, Z. Naturforschg. 1, 168 [1946].

nicht durch die Apparatur vorgetäuscht sein können.

### III. Ergebnisse

Zwei der erhaltenen Absorptionskurven in Blei und in Kupfer zeigt Abb. 1. Die Absorptionskurve in Blei läßt sich zwanglos in zwei Komponenten zerlegen, von denen die eine, härtere, die bereits bekannte  $\gamma$ -Strahlung darstellt. Aus dem erhaltenen  $\mu/\rho$  und der bereits früher durchgeführten Eichung der Geometrie mit den  $\gamma$ -Strahlen des 8-Tage-Jods ergibt sich wieder die Energie

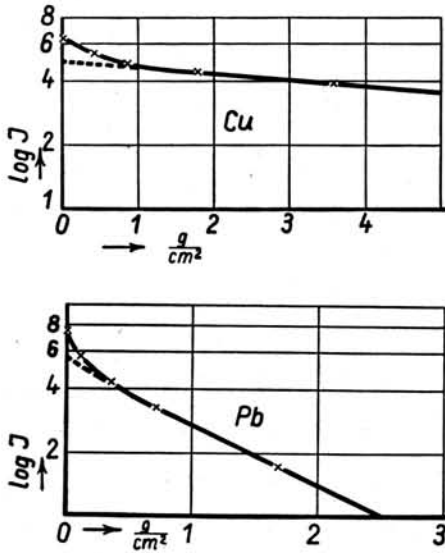


Abb. 1. Absorption der durchdringenden Strahlung des  $^{176}\text{Cp}$  in Blei und Kupfer.

dieser Strahlung zu  $E = 260$  keV. Bei kleiner Absorberdicke ist deutlich eine weiche Komponente vorhanden. Aus ihrer Absorbierbarkeit in Blei ergibt sich die Energie zu etwa 55 keV in guter Übereinstimmung mit dem zu erwartenden Wert von 52 keV für Yb-K-Strahlung. Die Absorptionskurve in Kupfer zeigt ebenfalls nach Abzug der harten Komponente einen weichen Anteil, für den sich in analoger Weise die Energie zu etwa 55 keV ergibt. Genau Entsprechendes gilt für die Absorptionskurve in Cadmium.

Wichtig ist noch das Verhältnis der beiden Intensitäten dieser Strahlungen. In beiden Absorptionskurven beträgt der weiche Anteil etwa 30%; berücksichtigt man die Fluoreszenzausbeute (85%), die wesentlich größere Absorbierbarkeit des letzteren im Messing und die Selbst-

absorption im  $\text{Cp}_2\text{O}_3$ , so findet man, daß etwa 19% dieser Strahlung austreten können, während die harte Strahlung nicht nennenswert geschwächt wird. Andererseits ist die Empfindlichkeit des Messing-Zählrohres für 52 keV größer als für 260-keV- $\gamma$ -Strahlen<sup>11</sup>, so daß also der Anteil von 30% in der Absorptionskurve bedeutet, daß die 52-keV- und die 260-keV-Strahlung in etwa gleicher Intensität emittiert werden.

Weiter ist noch von Bedeutung die Intensität der  $\gamma$ -Strahlung im Vergleich zu der  $\beta$ -Strahlung. Zur Ermittlung dieses Verhältnisses wurde wie folgt verfahren: Die von einem dünnen  $\text{Cp}_2\text{O}_3$ -Präparat (7 mg/cm<sup>2</sup>) ausgesandten  $\beta$ -Teilchen wurden mit einem 100  $\mu$ -Aluminium-Zählrohr in identischer Geometrie wie bei den  $\gamma$ -Versuchen gezählt. Aus der ebenfalls bekannten Absorptionskurve der  $\beta$ -Strahlen in Al wurde auf die Zählrohrdicke Null extrapoliert und so die pro g  $\text{Cp}_2\text{O}_3$  emittierte Zahl von  $\beta$ -Teilchen bestimmt. Dann wurde am starken Cassiopeiumpräparat unter Zwischenschaltung von genügend Al-Absorbern die Intensität der durchdringenden Komponente gemessen, und mit Hilfe der Zählroherempfindlichkeitskurven konnte daraus mit einiger Sicherheit die Zahl der  $\gamma$ -Quanten bestimmt werden. Nach Berücksichtigung des Anteils der weichen Komponente ergab sich so  $2 \pm 0,4$   $\gamma$ -Quanten pro  $\beta$ -Zerfall. Dieser Wert ist als genauer anzusehen als der früher mitgeteilte von 1–2  $\gamma/\beta$ , weil jetzt genauere Werte der Zählrohr-Empfindlichkeiten<sup>8</sup> zur Verfügung standen.

Betrachten wir nun die vorliegenden Ergebnisse und vergleichen sie mit den entsprechenden Resultaten von Bothe beim K-Einfang des angeregten  $^{176}\text{Cp}^*$ , so ergeben sich folgende Parallelen: 1. Die weiche Komponente stimmt überein mit der K-Strahlung, die beim K-Einfang des  $\text{Cp}^*$  auftritt. 2. Die  $\gamma$ -Strahlung hat dieselbe Energie wie die Strahlung des nach dem K-Einfang angeregt zurückbleibenden Yb-Kernes. 3. Die Intensitäten beider Komponenten sind gleich und sind doppelt so groß wie die der  $\beta$ -Teilchen. Wenn auch diese drei Ergebnisse für sich allein noch nicht hinreichen würden, um daraus auf K-Einfang des  $^{176}\text{Cp}$  zu schließen, so ist doch die Parallelität

<sup>11</sup> Nach einer gerechneten Kurve von Maier-Leibnitz<sup>8</sup> etwa um den Faktor 2, bei Benutzung der Überschlagsformel  $\epsilon \approx \mu R$  mit den  $\gamma$ -Absorptionskoeffizienten  $\mu$  nach Allen (Handbuch der Physik, 23, Artikel Bothe) und neueren Messungen der  $\beta$ -Reichweite  $R$ <sup>12</sup> wird der Faktor etwas kleiner.

zum Fall des  $^{176}\text{Cp}^*$  so zwingend, daß wir auch für den Kern  $^{176}\text{Cp}$  K-Einfang annehmen müssen.

Das bedeutet also, daß auch der Grundzustand des Kerns  $^{176}\text{Cp}$  dual zerfällt; außer dem bekannten  $\beta$ -Zerfall in  $^{176}\text{Hf}$  findet noch K-Einfang statt, der zum  $^{176}\text{Yb}$  führt. Eine Koinzidenzuntersuchung, ähnlich wie sie Maier-Leibnitz

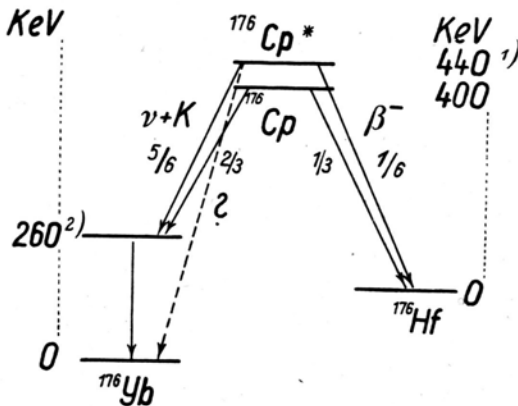


Abb. 2. Niveau-Schema. <sup>1)</sup> nach W. Bothe<sup>7</sup> 520 keV  
<sup>2)</sup>  $\approx$  200 keV.

und Bothe bei der künstlichen Aktivität durchführen konnten, würde natürlich auch hier noch erwünscht sein, doch erscheint dies wegen der viel zu geringen Intensität der natürlichen Aktivität als nicht angängig.

In Abb. 2 sind noch die bisher bei  $^{176}\text{Cp}$  erhaltenen Ergebnisse in Form eines Niveau-Schemas zusammengestellt. Sowohl der Grundzustand  $^{176}\text{Cp}$  wie der angeregte Zustand  $^{176}\text{Cp}^*$  zerfallen dual, und der K-Übergang führt von beiden Zuständen vermutlich zum gleichen Anregungszustand von 260 keV des  $^{176}\text{Yb}$  (nach Bothe un-

gefähr 200 keV). Ob der mit einem Fragezeichen versehene K-Übergang vom  $^{176}\text{Cp}^*$  in den Grundzustand des  $^{176}\text{Yb}$  auftritt, scheint noch nicht gesichert. Die Tatsache, daß Bothe beim  $^{176}\text{Cp}^*$  mehr K-Strahlung als  $\gamma$ -Strahlung findet (unter Berücksichtigung der anderen Empfindlichkeitsverhältnisse beim Aluminium-Zählrohr), scheint ein Hinweis hierauf zu sein.

Besondere Sorgfalt wurde auf die Ermittlung der  $\beta$ -Energie verwendet; die Schwierigkeit hierbei ist die noch nicht genügend genau bekannte Beziehung zwischen Reichweite und Energie von Elektronen in dem interessierenden Energiegebiet. Um hierüber möglichst genauen Aufschluß zu erhalten, wurden alle verfügbaren Daten zusammengestellt und durch Reichweitemessungen an einigen geeigneten Elektronen von Isomerenübergängen ergänzt<sup>12</sup>; die mit Hilfe dieser verbesserten Energie-Reichweite-Bestimmung erhaltenen  $\beta$ -Energien von 440 bzw. 400 keV sind in dem Schema eingezeichnet. Sie unterscheiden sich nicht von den ursprünglich angegebenen Werten, während Bothe<sup>7</sup> bei praktisch gleicher Reichweite die Energie des oberen Zustandes zu 520 keV ermittelte.

Die Halbwertszeit wurde von Libby<sup>13</sup> aus der Zahl der von einer dünnen Cp-Schicht ausgesandten  $\beta$ -Teilchen zu  $7,3 \cdot 10^{10}$  Jahren gemessen. Da nach Obigem außer dem  $\beta$ -Zerfall noch der zweimal häufigere K-Einfang stattfindet, ist also die Halbwertszeit des Rein-Isotopes nur ein Drittel dieses Wertes, nämlich  $T = 2,4 \cdot 10^{10}$  Jahre.

<sup>12</sup> A. Flammersfeld, Naturwiss. u. Z. Naturforsch., im Druck. Die Energie  $E$  (MeV) als Funktion der Reichweite  $R$  ( $\text{g}/\text{cm}^2 \text{Al}$ ) konnte im Gebiet 0 bis 3 MeV dargestellt werden durch die Formel  $E = 1,92 \sqrt{R^2 + 0,22 R}$ .

<sup>13</sup> W. F. Libby, Physic. Rev. **56**, 21 [1939].