

Ueber den -Zerfall des Radium A

Autor(en): **Labhart, H. / Medicus, H.**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Helvetica Physica Acta**

Band (Jahr): **16 (1943)**

Heft IV

PDF erstellt am: **12.07.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-111410>

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.

Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.

Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

Haftungsausschluss

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

Ueber den β -Zerfall des Radium A

von H. Labhart und H. Medicus.

(31. V. 1943)

Zusammenfassung: Mit Hilfe von Zählrohr-Messungen wird nach zwei verschiedenen Methoden nach der verschiedentlich vermuteten β -Aktivität des α -Strahlers Radium A gesucht. Innerhalb der Fehlergrenzen der Messmethoden wird keine β -Strahlung gefunden, und es kann gezeigt werden, dass, den ungünstigsten Fall vorausgesetzt, das Verzweigungsverhältnis β/α für dieses Element kleiner als 3,5‰ sein muss.

Problemstellung.

Alle Versuche, stabile Isotope des Elementes 85 (Ekajod) aufzufinden, sind bisher vergeblich geblieben. Dagegen ist es nicht ausgeschlossen, dass in den natürlichen radioaktiven Zerfallsreihen radioaktive Isotope des Elementes 85, z. B. durch β -Zerfall der A-Produkte, gebildet werden. MINDER¹⁾ hat darauf hingewiesen, dass sich insbesondere das Ra-A durch ein sehr hohes Neutronen-Protonen-Verhältnis auszeichnet, so dass also in Konkurrenz mit der bekannten α -Aktivität vielleicht auch ein β -Zerfall möglich wäre. TURNER²⁾ entdeckte bei den schweren Kernen eine empirische Regelmässigkeit im Vorkommen der schwersten β -stabilen Isotope. Daraus schloss er, dass Ra-A β -instabil sein könnte und mit einer β -Halbwertszeit von ungefähr 10 Stunden zerfallen sollte. Wenn man annimmt, dass α - und β -Zerfall eines dual zerfallenden Elementes voneinander unabhängig sind, so entspricht dem bei einer α -Halbwertszeit des Ra-A von 3 Minuten eine β/α -Verzweigung von ca. 1/2‰.

Die Schwierigkeit, diese kleine Verzweigung experimentell nachzuweisen, liegt vor allem darin, dass bei der verhältnismässig kurzen Lebensdauer des Ra-A sehr rasch das β -strahlende Ra-B entsteht, dessen Strahlung eine eventuelle β -Emission von Ra-A überdeckt. MINDER³⁾ versuchte, die β -Strahlung des Ra-A neben derjenigen des Ra-B und Ra-C nachzuweisen: Er befreite zu einer Zeit $t = 0$ ein Quantum Ra-Em von seinen Folgeprodukten. Unmittelbar nachher entstehen nun wieder Ra-A, Ra-B und Ra-C, von denen die beiden letzteren β -Strahler sind. (Fig. 1.) Da alle Halbwertszeiten dieser Elemente bekannt sind, kann man für jede

Folgezeit t die zu erwartende β -Aktivität berechnen und erhält so den in Fig. 2 durch Kurve I veranschaulichten Anstieg. Schreibt man aber auch dem Ra-A β -Aktivität zu, so erhält man eine gegenüber dieser Berechnung besonders im Anfang erhöhte Aktivität. Bei Annahme einer Verzweigung $\beta/\alpha = 1\%$ wird der β -Anstieg durch Kurve II dargestellt.

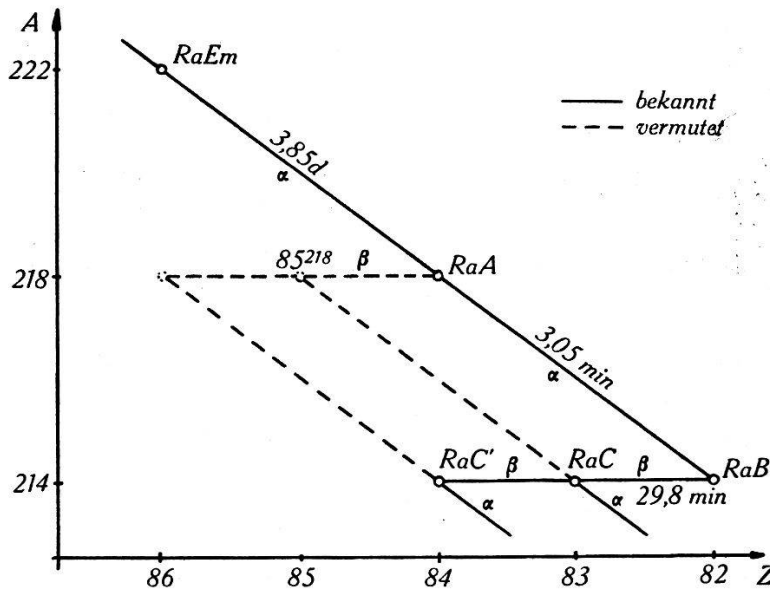


Fig. 1.

Zerfallsverhältnisse um RaA.

Messungen von MINDER, der Ionisationskammer und Elektrometer verwendete, ergaben eine deutliche Abweichung von der ohne Verzweigung berechneten Kurve I. Die ionisierte Wirkung der vom Ra-A ausgehenden β -Strahlung wird von MINDER zu 15% derjenigen von Ra-B angegeben. KARLIK und BERNERT⁴⁾ haben die Versuche MINDER's wiederholt, ohne aber eine β -Strahlung des Ra-A feststellen zu können; sie vermuten, dass MINDER's positives Resultat durch eine Verunreinigung der Emanation mit Ra-A vorgetäuscht worden sei.

CAUCHOIS und HULUBEI⁵⁾ sowie VALADARES⁶⁾ fanden Andeutungen von Linien des Elementes 85 im Röntgenspektrum von Ra-Emanation, welche im Gleichgewicht mit ihren Folgeprodukten stand.

Durch diese Versuche angeregt, haben wir die Zerfallsverhältnisse bei Ra-A mit Zählrohren nach zwei verschiedenen im folgenden beschriebenen Methoden untersucht. Wir haben dabei feststellen müssen, dass die Verzweigung, wenn sie überhaupt vorhanden ist, einen ausserordentlich kleinen Wert, höchstens in der Größenordnung des Promille, haben muss.

So bleibt also die Entstehung des Isotops 218 des Elements 85 aus Ra-A immer noch eine offene Frage. Mit Sicherheit ist bis heute nur das aus Wismut mit Hilfe der Kernreaktion $\text{Bi}(\alpha, 2n)\text{85}^{211}$ hergestellte Isotop des Ekajod bekannt⁷⁾.

Energiebetrachtungen.

Mit Hilfe von Energie- und Spinbetrachtungen sollte es theoretisch möglich sein, unter Heranziehung der SARGENT-Beziehung das Verzweungsverhältnis für Ra-A ziemlich genau abzuschätzen. Leider sind aber die in Betracht kommenden Energien nur aus den folgenden sehr rohen Überlegungen zu gewinnen.

Nach TURNER ist es wahrscheinlich, dass das aus Ra-A entstandene Ekajod wiederum α - und β -aktiv ist. Dabei soll der α -Zerfall so viel wahrscheinlicher sein, dass wir diesen allein betrachten können. Für diesen α -Zerfall lässt sich die Energie aus einem Schema von HEISENBERG⁸⁾ zu 6,8 MeV entnehmen. Diese Energie würde nach GEIGER-NUTTAL einer Halbwertszeit des Elements 85 von nur $1/20$ sec entsprechen.

Bei α -Zerfall von Ra-A und β -Zerfall von Ra-B werden unter Einrechnung der γ -Strahlung im ganzen 7,1 MeV frei. Die gleiche Energiedifferenz muss auch durch den β -Zerfall des Ra-A und den nachfolgenden α -Zerfall des Ekajod zustande kommen, wenn man annimmt, dass auf beiden Wegen der Grundzustand des Ra-C erreicht wird. Es bleiben daher für den β -Zerfall des Ra-A 0,3 MeV übrig. Nach der SARGENT-Beziehung entspricht dieser weichen β -Strahlung bei einer Spinänderung $\Delta I = 0$ eine Zerfallskonstante $\lambda_{A\beta} = 10^{-5} - 10^{-4} \text{ sec}^{-1}$. Weil das Verzweungsverhältnis gleich dem Quotienten der β - und α -Zerfallswahrscheinlichkeiten ist, resultiert daraus eine obere Grenze einer Gabelung β/α von maximal 3%. Die Spinänderung $\Delta I = 1$ würde auf eine hundertmal kleinere Gabelung führen. Wenn Ra-A in einen angeregten Zustand des Elements 85 übergeht und dieses erst durch γ -Strahlung seinen Grundzustand erreicht, so wirkt sich das wegen der SARGENT-Beziehung ebenfalls in einer Verminderung des grösstmöglichen Verzweungsverhältnisses aus. Eine untere Grenze für dasselbe kann somit nicht angegeben werden.

Messung des Anstiegs der β -Strahlung aus reiner Ra-Emanation.

Wenn das Verzweungsverhältnis in der Grössenordnung einiger Prozente liegen würde, müsste es möglich sein, dasselbe direkt durch Messung des Anstiegs der β -Strahlung aus reiner Ra-Emanation zu bestimmen. Während MINDER bei Verwendung von

Ionisationskammer und Elektrometer relativ grosse Emanationsmengen benötigte, kann man bei Verwendung von Zählrohren wegen deren grosser Empfindlichkeit mit ca. 100mal kleineren Emanationsmengen auskommen. So kleine Mengen sind viel leichter zu handhaben, namentlich aber viel leichter vom aktiven Niederschlag zu reinigen.

Liegt zur Zeit $t = 0$ reine Ra-Emanation vor, und bezeichnet man die Zerfallskonstanten mit λ und die Anzahl der zur Zeit t vorhandenen Atome eines Elements mit $N(t)$, wobei die auf Ra-Em, Ra-A usw. bezogenen Grössen die Indices Em, A usw. erhalten, so resultieren mit $N_{Em} \cdot \lambda_{Em} = 1$ folgende Ausdrücke für die verschiedenen $N(t)$:

$$N_A(t) = \frac{1}{\lambda_A} (1 - e^{-\lambda_A t})$$

$$N_B(t) = \frac{1}{\lambda_B} - \frac{1}{\lambda_B - \lambda_A} \left(e^{-\lambda_A t} - \frac{\lambda_A}{\lambda_B} e^{-\lambda_B t} \right)$$

$$N_C(t) = \frac{1}{\lambda_C} - C_1 e^{-\lambda_A t} - C_2 e^{-\lambda_B t} - C_3 e^{-\lambda_C t}$$

wobei

$$C_1 = \frac{\lambda_B}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)}, \quad C_2 = \frac{\lambda_A}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)},$$

$$C_3 = \frac{\lambda_A \lambda_B}{\lambda_C(\lambda_C - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_B)}.$$

Bedeutet p das Verzweigungsverhältnis von Ra-A, so ereignen sich pro Zeiteinheit

$$Z = p\lambda_A N_A + \lambda_B N_B + \lambda_C N_C$$

β -Zerfälle, wovon in der Zählordnung

$$Z' = \Omega(Ap\lambda_A N_A + B\lambda_B N_B + C\lambda_C N_C)$$

gezählt werden. Ω berücksichtigt den Raumwinkel der Anordnung, die Koeffizienten A, B, C tragen der Absorption der betreffenden Strahlung in der Zählrohrwandung aus $6 \cdot 10^{-3}$ cm dickem Aluminium Rechnung. Die Absorptionskoeffizienten haben für die β -Strahlen des Ra-B und Ra-C die Werte $\mu_B = 80 \text{ cm}^{-1}$ und $\mu_C = 13,5 \text{ cm}^{-1}$. Damit sind B und C zu

$$B = e^{-80 \cdot 6 \cdot 10^{-3}} = 0,62 \quad C = e^{-13,5 \cdot 6 \cdot 10^{-3}} = 0,92$$

bestimmt. Da die Härte der β -Strahlung des Ra-A nicht bekannt

ist, sei vorläufig $A = 1$ gesetzt. Zur numerischen Berechnung der Anstiegskurven von Fig. 2 sind für die Zerfallskonstanten die Werte

$$\begin{aligned}\lambda_{A\alpha} &= 0,2273 \text{ min}^{-1} = 3,79 \cdot 10^{-3} \text{ sec}^{-1} \\ \lambda_B &= 0,0258 \quad ,, = 4,30 \cdot 10^{-4} \quad ,, \\ \lambda_C &= 0,0355 \quad ,, = 5,92 \cdot 10^{-4} \quad ,, \end{aligned}$$

benützt worden.

Weil unsere Kurven relative Werte zu verschiedenen Zeitpunkten darstellen, haben wir die Intensität aus messtechnischen Gründen jeweils im Zeitpunkt $t = 9,5$ min gleich 1 gesetzt.

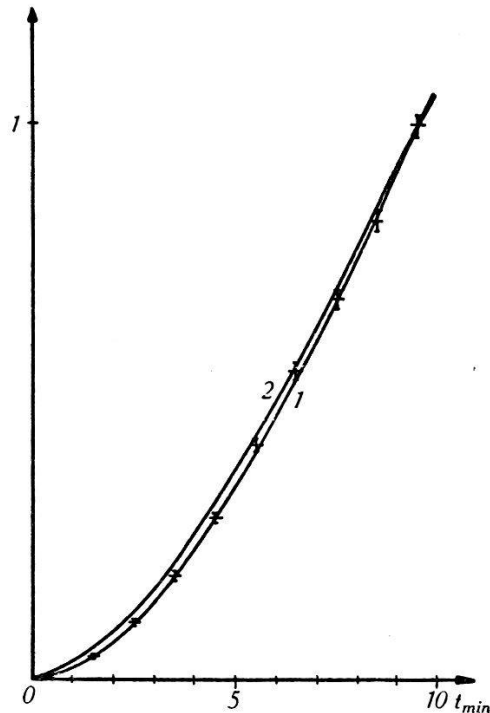


Fig. 2.

Anstieg der β -Aktivität aus reiner Ra-Emanation bei 0,06 mm Aluminium als Absorber.

1 = Berechnete Kurve ohne β -Strahlung bei RaA. 2 = Berechnete Kurve bei einer Verzweigung von 1% und sehr harter β -Strahlung von RaA ($A = 1$).

\pm = Messpunkte mit Angabe der mittleren Fehler.

Der Anstieg der β -Aktivität wurde in einem zylindrischen Gefäß von ca. einem Liter Inhalt mit Hilfe eines axial eingebauten Zählrohrs von 14 mm Durchmesser bei 60μ Al-Wandstärke bestimmt. Die Dicke der Wand des Zählrohrs war so bemessen, dass α -Strahlen gerade zurückgehalten wurden, während die β -Strahlen hindurchtreten konnten.

Um den Anschluss der Messungen an die theoretischen Kurven zu erreichen, sind dieselben ebenfalls bei $t = 9,5$ min auf den Wert 1 reduziert worden. Die Messpunkte sind in Fig. 2 unter Angabe der statistischen Fehler eingetragen. Es zeigt sich, dass

keine systematischen Abweichungen von Kurve I vorhanden sind. Eine Fehlerbetrachtung, in welche die Härte der von Ra-A ev. emittierten β -Strahlung natürlich eingeht, zeigt, dass die Verzweigung $\beta/\alpha < 2\%$ sein muss. Eine genaue Diskussion des Einflusses der Härte der β -Strahlung des Ra-A auf die Empfindlichkeit der Methode wird weiter unten bei Besprechung der zweiten Messmethode gegeben.

Messung des Anstiegs der β -Strahlung aus reinem Radium-A.

Mit der im vorangehenden Abschnitt dargelegten Methode konnte zwar ein Verzweigungsverhältnis über 2% ausgeschlossen werden, eine Gabelung aber in der Grössenordnung, wie sie TURNER vorausgesagt hatte, liesse sich auf diese Weise nicht feststellen. Die relativ geringe Empfindlichkeit der Methode rührt daher, dass bei ihr die eventuelle β -Strahlung des Ra-A nur als Differenzeffekt bei den Anstiegskurven mit und ohne Gabelung eingeht. Eine Anordnung, die diese Strahlung allein zu messen vermag, wird daher bedeutend präzisere Resultate liefern können.

Scheidet man auf einem Träger in kürzester Zeit völlig reines Ra-A ab und misst sogleich den Anstieg der sich daraus entwickelnden β -Aktivität, so lässt sich mittels Extrapolation auf den Nullpunkt der Aktivierung aussagen, ob das reine Ra-A β -strahlend ist. Für den Anstieg der Intensität der β -Strahlung, der ja nur für die ersten 30 Sekunden interessiert, innerhalb denen $\lambda \cdot t \ll 1$ noch erfüllt ist und deshalb $e^{-\lambda t}$ durch $(1 - \lambda t)$ ersetzt werden kann, ergeben sich bei Annahme einer unendlich kurzen Aktivierungsdauer die folgenden Gleichungen für die Zahl der β -Zerfälle:

$$\begin{aligned} Z_A &= p \lambda_A (1 - \lambda_A t) \\ Z_B &= t \lambda_A \lambda_B \end{aligned}$$

Z_C verschwindet in dieser Näherung. Die Zahl der beobachteten β -Zerfälle beträgt somit $Z' = \Omega [A p \lambda_A (1 - \lambda_A t) + B t \lambda_A \lambda_B]$. Ω , A und B tragen wieder dem Raumwinkel und der Absorption Rechnung. Hieraus ist ersichtlich, dass bei Abwesenheit der gesuchten β -Strahlung die Anstiegskurve eine durch den Ursprung gehende Gerade ist, im andern Fall aber zur Zeit $t = 0$ schon eine β -Aktivität bemerkbar sein muss.

Experimentell bietet sich nun leider keine Möglichkeit, einen von Folgeprodukten freien Niederschlag so rasch zu sammeln, dass sich in der dazu benötigten Zeit noch keine feststellbare Menge Ra-B gebildet hätte. Der Einfluss einer endlichen, aber doch kurzen Aktivierungsdauer auf die oben gegebenen Anstiegskurven lässt

sich aber leicht eliminieren. Für das Verständnis ist es notwendig, kurz den experimentellen Vorgang der Aktivierung zu beschreiben: Als Träger des aktiven Niederschlages dient ein evakuierbarer Hohlzylinder von 10 cm Höhe und 5 cm Innendurchmesser. Er kann mit einer Waschflasche in Verbindung gesetzt werden, die in Wasser gelöste Emanation enthält. Lässt man den zuvor evakuierten Zylinder durch die Waschflasche Luft ansaugen, so wird hierbei eine Portion Emanation aus der Lösung herausgequirlt und gelangt in den Zylinder. Nachdem sich nach 5 Sekunden der Druckausgleich vollzogen hat, wird in der 6. Sekunde die Emanation aus dem Zylinder mittels einer nun angeschlossenen Vorratsvakuumflasche entfernt. Die Zahl der während der Aktivierung in der Sekunde entstehenden Ra-A-Atome ist proportional der Füllung des Zylinders mit Emanation und deshalb eine Funktion der Zeit, die sich in ihren wesentlichen Zügen durch eine Kurve $f(\tau)$ darstellen lässt (Fig. 3), die folgenden Verlauf zeigt:

$$0 \text{ sec} < \tau < 5 \text{ sec}: f(\tau) = f_{\max}(1 - e^{-\nu\tau}) \quad \nu \approx 1 \text{ sec}^{-1}$$

$$5 \text{ sec} < \tau < 6 \text{ sec}: f(\tau) = f_{\max}(6 - \tau)$$

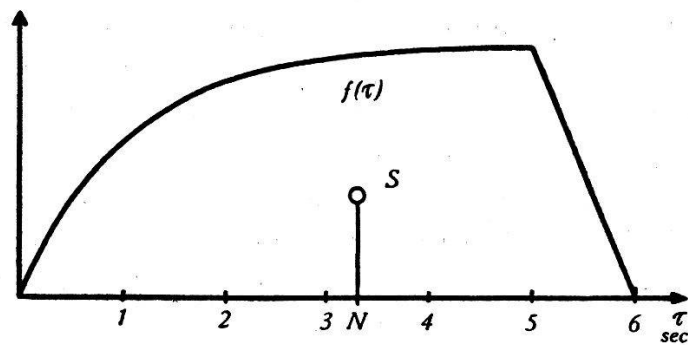


Fig. 3.

Darstellung der Kurve $f(\tau)$, die den Vorgang der Aktivierung des Zylinders beschreibt.

N = Abszisse des Schwerpunktes S der von der Kurve $f(\tau)$ und der Abszissenachse gebildeten Fläche = effektiver Nullpunkt.

Rechnet man die Zeit vom Anfang der Aktivierung an, so wird unter Berücksichtigung der endlichen Aktivierungsdauer die Zahl der zur Zeit t registrierten Teilchen

$$Z^* = \int_{\tau=0}^t f(\tau) Z'(t - \tau) d\tau$$

Mit den oben angegebenen Funktionen $f(\tau)$ und $Z'(t)$ erhält man nach Integration für Z^* folgende Anstiegskurve:

$$Z^* = \{4,5 p A \lambda_A \lambda_B [1 - \lambda_A(t - 3,14)] + 4,5 B \lambda_A \lambda_B (t - 3,14)\} \Omega f_{\max}$$

Dies ist eine Gerade (Fig. 4), die aber, wenn $p = 0$ ist, die Abszissenachse bei $t = 3,14$ sec schneidet. Die allgemeine Durchrechnung lässt erkennen, dass dieser Punkt mit der Abszisse des Schwerpunkts der durch die Kurve $f(\tau)$ und die Zeitachse gebildeten Fläche zusammenfällt. Der Anstieg erfolgt so, als wäre alles Ra-A zu dieser Zeit auf den Träger niedergeschlagen worden. Dieser Punkt sei daher im folgenden als effektiver Nullpunkt bezeichnet.

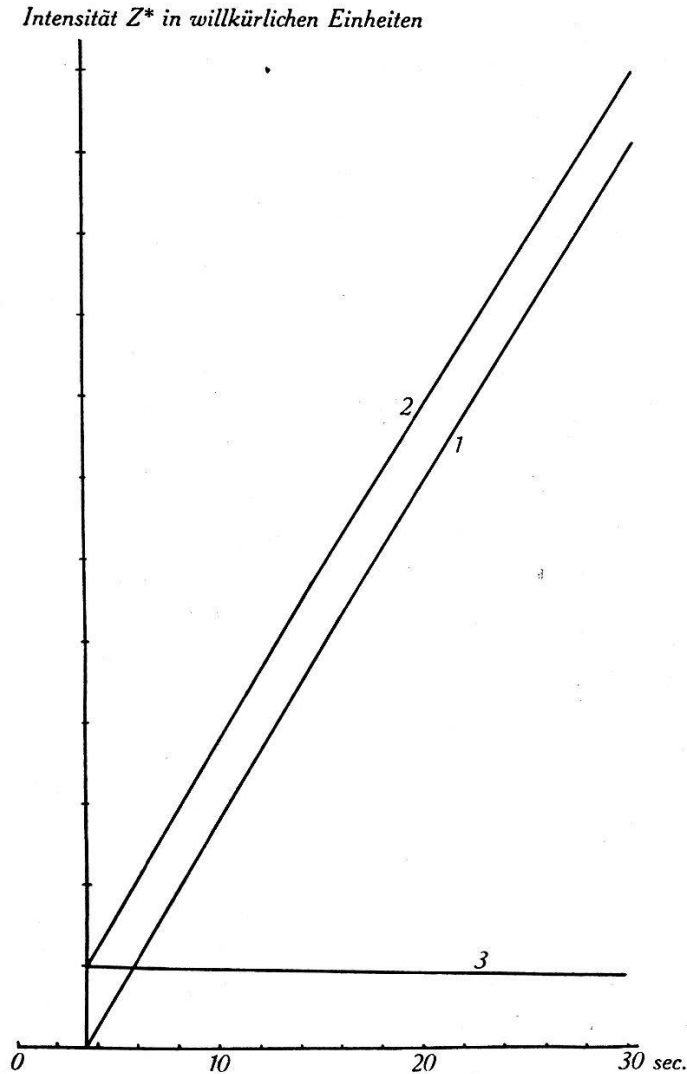


Fig. 4.

Kurve 1: Anstieg der β -Aktivität ohne Verzweigung. Kurve 2: Anstieg der β -Aktivität bei einer Verzweigung von $1^0/_{00}$ ($\mu_{A\beta} = 80 \text{ cm}^{-1} \text{ Al}$). Kurve 3: Entsprechender Anteil der β -Aktivität des RaA.

Der Wert von $3,14$ sec ist bei der mit einiger Willkür angenommenen Funktion $f(\tau)$ natürlich unsicher, doch kann aus der Beobachtung der Durchquirlung der Emanationslösung bestimmt gesagt werden, dass ein noch schnellerer Anstieg als der angenommene nicht in Frage kommt. Dieser Wert kann deshalb als Mini-

malwert für die Lage des effektiven Nullpunkts gelten. Andererseits kann auch ersehen werden, dass die Intensität der Durchquirlung mit der Zeit nicht zunimmt, $f(\tau)$ im andern Grenzfall also höchstens durch eine Gerade dargestellt wird. Dies entspräche einem effektiven Nullpunkt bei 3,66 sec. In Wirklichkeit wird dieser daher zwischen $t = 3,14$ sec und $t = 3,66$ sec, also in der Umgebung von $t = 3,4$ sec liegen. Diese Unsicherheit des Nullpunktes wird bei der Fehlerbetrachtung ganz genau berücksichtigt.

Versuchsordnung.

Zur Gewinnung eines von Folgeprodukten freien Ra-A wurde die in Fig. 5 dargestellte Apparatur benützt: Im wesentlichen besteht sie aus einer Vorratsflasche A, der Waschflasche B, dem Aktivierungszylinder C und den Vorratsvakuumflaschen D und E. Zwei ins Freie führende Leitungsrohre sind mit *a* und *b* bezeichnet.

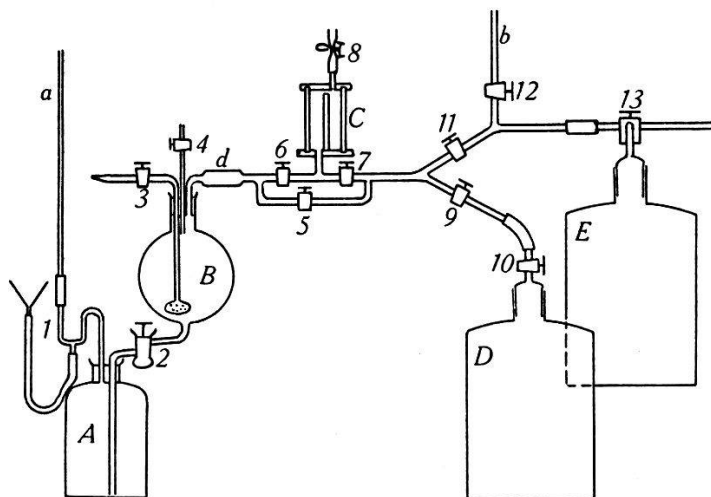


Fig. 5.

Aktivierungsapparatur.

Die 2 Liter fassende Vorratsflasche ist völlig mit emanationshaltigem Wasser gefüllt. Das nicht mit Wasser angefüllte Volumen beträgt nur ca. 1 cm^3 , so dass bei einer Temperatur von 10°C nur wenig mehr als $1/100$ der gesamten Emanationsmenge sich im luft-erfüllten Raum im oberen Bogen des Quecksilberschlusses 1 befindet. Bei jedem Versuch geht diese Menge verloren und entweicht durch die Leitung *a* ins Freie. Der Glasschliff der Vorratsflasche ist mit Quecksilber abgedichtet, da Emanation die Eigenschaft besitzt, durch Hahnfett zu diffundieren. Aus demselben Grund besitzt auch der Hahn 2 einen Hg-Abschluss. Der Einsatz der Waschflasche B endigt in einer Brause mit ungefähr einem Dutzend Löchern von 1 mm Durchmesser; es ist damit eine feine

Verteilung des die Lösung durchquirlenden Luftstromes gewährleistet. Ein Glaswollefilter d verhindert, dass vom Luftstrom mitgerissene Flüssigkeitströpfchen in den Zylinder gelangen können. Der inwendig polierte Eisenzylinder bildet die Aktivierungskammer C . Diese kann durch einen Boden und einen Deckel, die beide mit Gummi ausgelegte Nuten besitzen, abgeschlossen werden. Diese Abdichtung hält den Unterdruck genügend lange aufrecht und gestattet ein sehr rasches Abnehmen des Zylinders nach der Aktivierung. Im Boden befindet sich die Zuleitung, im Deckel ein mit Quetschhahn 8 verschliessbarer Ansatz, durch den zur Spülung nach Niederschlagen des Ra-A Luft durch die Kammer gesaugt werden kann. Ein im Innern des Zylinders vorhandener Messingstab ist mit der + 2000 Volt-Klemme des Zählrohr-Hochspannungsgerätes verbunden, während der Zylinder selbst geerdet ist. Diese Anordnung hat den Zweck, die aus den Emanationsatomen gebildeten und im Moment ihres Entstehens positiv geladenen Ra-A-Atome auf den Zylinder zu ziehen. Bei der angelegten Spannung von 2000 Volt ist praktisch Sättigung erreicht.

Die Aktivierung geht folgendermassen vor sich: Es seien zunächst alle Hähne ausser 7, 9, 10, 11 und 13 geschlossen. C , D und E werden mittels einer Wasserstrahlpumpe, die bei Hahn 13 angeschlossen ist, evakuiert. Hierauf werden Hahn 7 und 9 geschlossen und 13 so gestellt, dass die Flasche E nur mit der linken Seite der Apparatur in Verbindung steht. Die Verschlüsse 1, 2 und 5 werden nur in dieser Reihenfolge geöffnet. Durch den Unterdruck in E wird der Kolben B in ca. 10 sec. gefüllt. Da hierbei nicht zu vermeiden ist, dass sich Emanation aus dem Wasser freimacht, wird diese durch Öffnen von Hahn 4 weggespült. Nun werden die Hähne 4 und 5 wieder geschlossen und darauf 3 und 6 geöffnet. Der Unterdruck im Zylinder C saugt Luft durch die Flasche B , die hierbei eine Portion Emanation aus der Lösung herausquirlt. Durch eine bei Hahn 3 angebrachte Kapillare ist die Geschwindigkeit der einströmenden Luft so reguliert, dass nach 5 Sekunden der Zylinder keine weitere Luft mehr ansaugt. Unterdessen ist Hahn 11 geschlossen und 9 geöffnet worden. Nach der 5. Sekunde wird durch Schliessen von 6 und Öffnen von 7 die emanationshaltige Luft in die Vorratsvakuumflasche D abgesaugt, der Quetschhahn 8 wird geöffnet und Luft durch den Zylinder gespült. Hierauf wird der Zylinder abgenommen, über das Zählrohr geschoben und seine Aktivität gemessen. Durch geeignete Hahnstellungen kann nach dem Versuch die Emanationslösung wieder in die Vorratsflasche A zurückgebracht werden, ohne dass irgend welche Emanation ins Zimmer dringen kann. Die Flaschen D und E werden im

Freien ausgelüftet. Die Verwendung von Vorratsvakuumflaschen ist, abgesehen davon, dass durch sie eine Verseuchung des Raumes verhütet wird, darum angebracht, weil sie eine hohe Sauggeschwindigkeit entwickeln, was besonders bei der Wiederevakuierung des Zylinders *C* notwendig ist. Diese Vorteile wiegen die Nachteile einer vermehrten Kompliziertheit der Anlage weit auf.

Aus früheren Versuchen konnte abgeschätzt werden, dass bei einer Durchquirlzeit von 5 Sekunden ca. $\frac{1}{100}$ der im Wasser gelösten Emanation in den Zylinder gelangt. Da aus Intensitätsgründen für jede Aktivierung ungefähr 1 mc in den Zylinder gelangen muss, ist es nötig, im Wasser 100—150 mc Emanation gelöst zu halten.

Zur Abschirmung der Strahlung sind Vorratsflasche und Kolben mit einer 10 cm dicken Bleiwand umgeben.

Das mit 85 mm Argon und 10 mm Alkoholdampf gefüllte *Zählrohr* besass eine Wandstärke von $5 \cdot 10^{-3}$ cm. Zur Erhöhung der mechanischen Festigkeit wurde es vor der Evakuierung in ein *Blendensystem* eingespannt, das schief auf die Wandung auftreffende Teilchen fernhalten sollte. Dadurch wird nämlich für den Fall, dass wie zu erwarten die β -Strahlung von Ra-A weicher als die von Ra-B ist, die Empfindlichkeit der Anordnung erhöht. Das möge folgende Überlegung veranschaulichen: Bei senkrechtem Durchtritt durch die Zählrohrwand wird die Strahlung von Ra-B um den Faktor $e^{-80 \cdot 0,005} = 0,670$ geschwächt, diejenige von Ra-A aber um den Faktor $e^{-200 \cdot 0,005} = 0,368$, wenn beispielsweise $\mu_A = 200 \text{ cm}^{-1}$ Al angenommen wird. Das Verhältnis der Schwächung der β -Strahlen von Ra-A und Ra-B beträgt somit 1,82. Betrachtet man dagegen schief auffallende Teilchen, die z. B. die doppelte Dicke Aluminium, also 0,01 cm, durchdringen müssen, so verhalten sich die Schwächungen wie 3,34 : 1. Die Strahlung von Ra-A wird also, wenn schiefer Einfall zugelassen ist, im ganzen gegenüber von Ra-B stärker unterdrückt und damit weniger gut bemerkbar, was eine Verminderung der Empfindlichkeit der Methode zur Folge hat. Das Blendensystem, mit dem das Zählrohr umgeben war, bestand einerseits aus ringförmigen Blechen in Abständen von 7,5 mm, andererseits aus 20 dazu senkrechten radial angeordneten Wänden. Die Konstruktion war so getroffen, dass sie ein rasches Überstülpen des Zylinders erlaubte, ohne dass dabei der aktive Niederschlag abgescheuert wurde.

Da das Ra-A auf dem Zylinder nicht genau dosiert werden konnte, war damit zu rechnen, dass zu Beginn der Beobachtung, also ungefähr 10 Sekunden nach Beginn der Aktivierung, 3—10 Teilchen pro Sekunde, hingegen bis über 30 Teilchen pro Sekunde bei

Beendigung der Beobachtung registriert wurden. Es war daher nötig, ein Zählwerk mit hohem Auflösungsvermögen zu wählen. Hierzu wurde eine Taschenuhr so umgebaut, dass ihr Sekundenzeiger als Zählwerk diente. Dies hatte zugleich den Vorteil, dass der Zählerstand mit Leichtigkeit photographisch registriert werden konnte, ohne dass zu befürchten war, dass eine Messung wegen Unlesbarkeit infolge eines während der Aufnahme erfolgten Zifferwechsels unbrauchbar geworden wäre, wie das bei einem Telephonzählwerk bei hohen Stosszahlen ziemlich oft der Fall gewesen wäre.

Wegen ihres hohen Auflösungsvermögens kam die von PICKERING⁹⁾ angegebene Schaltung für den Verstärker zur Anwendung. Das Auflösungsvermögen der gesamten Zählordnung betrug $5 \cdot 10^{-3}$ sec.

Um den Anstieg der Aktivität in Funktion der Zeit messen zu können, war neben dem Zählwerk eine schnell laufende Stoppuhr angebracht, die zu Beginn der Aktivierung in Gang gesetzt wurde. Uhr und Zählwerk photographierten wir, sobald der aktivierte Zylinder über das Zählrohr geschoben war, in 2-sekündlichen Intervallen. Jede Messreihe bestand aus 12 Aufnahmen, deren erste auf die Zeit $t = 9$ sec nach Beginn der Aktivierung fiel. Zur Verwendung kam eine Leica-Kamera, bei der Filmtransport und Aufziehen des Verschlusses automatisch durch einen Leica-Motor erfolgten. Die noch vorhandenen Ungleichheiten in der Länge der Intervalle wurden bei der Auswertung berücksichtigt.

Messergebnisse und Fehlerrechnung.

Vor Beginn jeder Messreihe wurde der Nulleffekt ermittelt. Er bewegte sich zwischen 0,7 und 1,3 Stößen pro Sekunde, je nach der Verseuchung des Zimmers und des Blendensystems mit langlebigem Niederschlag. Im ganzen wurden 16 Messreihen aufgenommen. Die schwächste Aktivierung lieferte für das Intervall der 29. und 30. Sekunde 22, die stärkste 68 Stöße, wobei der Nulleffekt abgezogen ist. Zur Auswertung wurden zunächst für jede einzelne Messreihe die Stosszahlen in Funktion der Zeit aufgetragen. Da die photographischen Aufnahmen mit kleinen Abweichungen von den Sollzeiten behaftet waren, war eine Reduktion der Stosszahlen auf diese Zeiten notwendig; sie geschah durch eine Verschiebung der Punkte parallel zu einer durch die Messpunkte gelegten Geraden. Die zu gleichen Zeiten gehörenden Messpunkte aller 16 Messreihen wurden dann zusammengezählt und damit die Messpunkte gewonnen, die in Fig. 6 eingetragen sind. Die Ordinate gibt die Gesamtteilchenzahl pro Sekunde. (Die aus

der Addition erhaltenen Werte sind daher noch durch 2 dividiert.) Der erste Messpunkt, der den Zeitraum der 9. und 10. Sekunde nach Beginn der Aktivierung umfasst, und deshalb auf die 10. Sekunde fällt, ist mit 162 Stößen gesichert, der letzte Messpunkt bei der 30. Sekunde mit 598 Stößen. Durch die Messpunkte wurde mit Hilfe der Methode der kleinsten Quadrate eine Gerade gelegt. Auf diese Weise konnte auch der mittlere Fehler in der Ordinate beim effektiven Nullpunkt, der wie schon bemerkt bei $t = 3,4 \pm 0,2$ sec liegt, ermittelt werden.

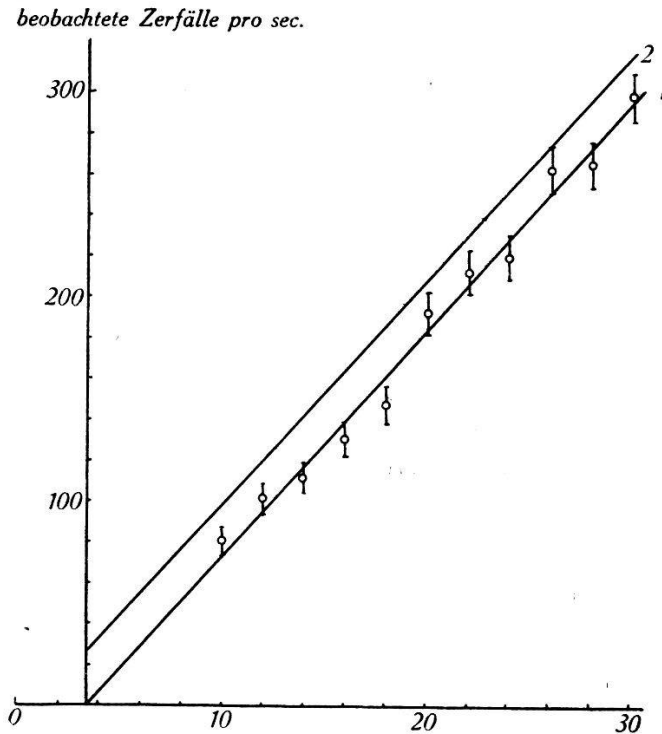


Fig. 6.

○ Messpunkte mit Angabe der mittleren Fehler.

Kurve 1: Aus den Messpunkten erhaltene Anstiegsgerade. Kurve 2: Berechnete Anstiegsgerade bei einer Verzweigung von 1‰ ($\mu_{A\beta} = 80 \text{ cm}^{-1} \text{ Al}$).

Die Extrapolation der Messungen zeigt, dass die Aktivität an diesem Punkt 0 ± 15 Stöße/sec beträgt. Es liegt somit überhaupt keine Andeutung einer β -Strahlung von Ra-A vor.

Ausser dem angegebenen statistischen Fehler muss noch mit den systematischen Fehlern gerechnet werden. Hier kommt der Fehler in Betracht, der durch ungenaue Bestimmung der Trennzeit des Zählwerks verursacht ist. Die durchschnittliche Korrektur für den letzten Punkt beträgt 3 Stöße/sec. Da die Korrektur in erster Näherung proportional der Trennzeit ist und diese mit einer Genauigkeit von 30% gemessen wurde, beträgt der Fehler in der Korrektur höchstens ± 1 Stoss/sec. Das ergibt für 16 Messreihen

± 16 Stösse/sec für den letzten Punkt. Die Genauigkeit der Stosszahlen im Anfang der Messungen ist dagegen ziemlich unempfindlich auf eine fehlerhafte Trennzeitbestimmung, da hier die Korrekturen ohnehin klein sind. Durch Addition dieses systematischen Fehlers zum mittleren zufälligen Fehler wird der Fehler im Nullpunkt ± 21 Stösse/sec. Der Vergleich mit der in Fig. 6 dargestellten Anstiegskurve zeigt, dass die Intensität von 21 Stößen/sec am Nullpunkt bei der hier vorliegenden Neigung der Anstiegskurve einer Verzweigung von $0,8\%$ entspricht, wenn die Härte der Strahlung $\mu = 80 \text{ cm}^{-1}$ beträgt.

Ist aber die Strahlung weicher, so muss die β -Strahlung des Ra-A intensiver sein, damit sie gegenüber derjenigen von Ra-B gleich stark hervortritt. Für verschiedene Werte von μ erhält man folgenden Gang der Empfindlichkeit der Methode auf eine Verzweigung bei Ra-A (Fig. 7, Kurve 1).

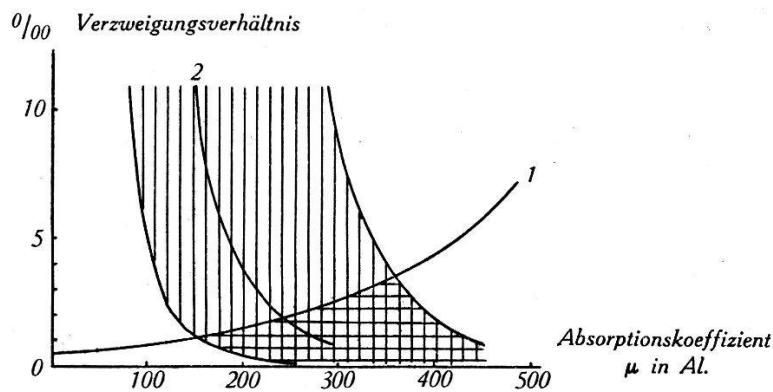


Fig. 7.

Empfindlichkeit des Versuchs auf eine Verzweigung in Funktion der Härte der β -Strahlung des RaA (1). Wahrscheinlichster Zusammenhang zwischen Härte der Strahlung und Verzweigungsverhältnis (2).

Zunächst wäre nun durchaus denkbar, dass eine erhebliche Verzweigung mit weicher Strahlung der Beobachtung entgangen sein könnte. Doch sind Härte der Strahlung und Abzweigungsverhältnis nicht unabhängig voneinander. Dieses ist durch die β -Halbwertszeit des Ra-A bestimmt, jene im wesentlichen durch die Maximalenergie der ausgesandten β -Teilchen. β -Halbwertszeit und Maximalenergie der β -Spektren sind aber durch die Sargent-Beziehung miteinander verknüpft. Mit ihr kann der in Fig. 7 durch Kurve 2 dargestellte Zusammenhang gefunden werden. Da die genannte Beziehung die Verhältnisse nur grössenordnungsmässig wiedergibt, ist die Kurve 2 nach oben und unten um einen Faktor 10 zu dem in der Figur schraffierten Gebiet erweitert. Unter Berücksichtigung der Empfindlichkeit des Versuches kann somit ausgesagt werden,

dass eine allfällige Verzweigung einem Punkt entsprechen muss, der im kreuzweise schraffierten Gebiet des Diagramms liegt und daher *nicht mehr als* $3,5\%$ betragen kann.*)

Wir möchten unserem verehrten Lehrer, Herrn Prof. Dr. P. SCHERRER, für sein stets förderndes Interesse bei der Ausführung der Arbeiten bestens danken.

Unser Dank gilt auch dem Radium-Institut Genf für die Überlassung der Radium-Emanation und Herrn Prof. E. RAMSER, der uns für die Versuche, die wegen der Gefahr einer radioaktiven Verseuchung ausserhalb des physikalischen Institutes ausgeführt wurden, die Räumlichkeiten des kulturtechnischen Laboratoriums der E.T.H. zur Verfügung stellte. Dem optischen Institut W. Koch danken wir für die freundliche leihweise Überlassung des Leica-Motors.

Zürich, Physikalisches Institut der E.T.H.

Literaturverzeichnis.

- 1) MINDER, *Helv. Phys. Acta* **11** (1938), 497.
- 2) TURNER, *Phys. Rev.* **57** (1940), 950.
- 3) MINDER, *Helv. Phys. Acta* **13** (1940), 144.
- 4) KARLIK und BERNERT, *Naturwiss.* **30** (1942), 685.
- 5) HULUBEI und CAUCHOIS, *C. R.* **209**, 40.
- 6) VALADARES *Atti Reale Acad. d'Italia, Rendiconti* **7**, Ser. 2 (1941), 351, 1049.
- 7) CORSON, MAC KENZIE und SEGRÈ, *Phys. Rev.* **58**, (1940), 672.
- 8) HEISENBERG, *Congrès Solvay Paris 1934*, 289 (zitiert in v. Weizsäcker, *Atomkerne*, S. 40).
- 9) PICKERING, *Rev. Sc. Instr.* **9** (1938), 180.

*) *Anmerkung bei der Korrektur:* Soeben berichten KARLIK und BERNERT in *Naturwiss.* **31**, 298 (1943), dass sie mittels Ionisationskammer und linearem Verstärker α -Strahlen nachweisen konnten, welche sie dem Element 85^{218} zuschreiben. Aus ihren Messungen schliessen sie auf ein Verzweungsverhältnis bei Ra-A von $0,4\%$, was mit unseren Resultaten durchaus in Einklang steht.