Zeitschrift: Helvetica Physica Acta
Band: 18 (1945)
Heft: V

Artikel: Der Zerfall des UZ und die UX2-UZ-Isometrie
Autor: Bradt, H. / Scherrer, P.
DOI: https://doi.org/10.5169/seals-111614

Nutzungsbedingungen
Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Mehr erfahren

Conditions d'utilisation
L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. En savoir plus

Terms of use
The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. Find out more

Download PDF: 16.07.2025

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, https://www.e-periodica.ch

Der Zerfall des UZ und die UX_2-UZ-Isomerie

von **H. Bradt** und **P. Scherrer.**

(12. IV. 1945.)

Zusammenfassung. Mit dem magnetischen Halbkreisspektrographen wurde das β-Spektrum des UZ ausgemessen und die obere Grenze des intensiveren weichen Partialspektrums zu $E_I = (0{,}45 \pm 0{,}03)$ MeV bestimmt. (β,γ)-Koinzidenzmessungen ergaben für die absolute Intensität der 0,8 MeV-γ-Strahlung des UZ den Wert $(1{,}8 \pm 0{,}2)$ Quanten pro Zerfall. Eine Richtungskorrelation der zwei beim häufigeren UZ-Zerfall (weiches Partialspektrum) sukzessiv emittierten Quanten ist nicht nachweisbar. Die Untersuchung der vom UZ ausgesandten Strahlung bestätigt das von FEATHER und BRETSCHER aufgestellte Schema des UZ-Zerfalls und zeigt, dass UX_2 der angeregte metastabile Zustand, UZ der Grundzustand des Pa^{234} ist.

Im β-Spektrum des UX konnten zwei sehr schwache β-Linien von 372 keV und 387 keV nachgewiesen werden, die als L- und M-Konversionslinien einer vom UX_2 emittierten, sehr stark konvertierten $(0{,}394 \pm 0{,}005)$ MeV-γ-Strahlung anzusehen sind. Durch Aussendung dieser Strahlung geht das normalerweise durch Aussendung eines Zerfallselektrons sich umwandelnde UX_2 in 0,15% aller Fälle in den Grundzustand UZ über. Die beobachtete γ-Lebensdauer des UX_2 ist in guter Übereinstimmung mit der für einen Drehimpulsunterschied $J_{UZ} - J_{UX_2} = 5\,\hbar$ und für eine Anregungsenergie $E_{UX_2} - E_{UZ} = 0{,}394$ MeV theoretisch berechneten Lebensdauer.

I. Einleitung.

Die von HAHN[1]) im Jahre 1921 entdeckte Isomerie der zwei β-aktiven Pa^{234}_{91}-Kerne UX_2 und UZ mit den Halbwertszeiten 1,14 min und 6,7 h ist der am längsten bekannte Fall von Kernisomerie. Aber gerade bei diesem Isomerenpaar ist das Zerfallsschema verhältnismässig kompliziert und in den Einzelheiten noch nicht genügend aufgeklärt worden. Die letzte genaue Untersuchung der Strahlung des UZ wurde im Jahre 1938 von FEATHER, BRETSCHER und DUNWORTH[2])[3]) veröffentlicht. Um durch Vervollständigung der Messungen dieser Autoren zu genaueren quantitativen Aussagen über das von FEATHER und BRETSCHER[2]) aufgestellte Niveauschema des UZ-Zerfalls zu gelangen, wurde die β- und γ-Strahlung des UZ, insbesondere unter Verwendung der Koinzidenzmethode, untersucht. Unter anderem sollte auch definitiv entschieden werden, welches der beiden Isomere UX_2 und UZ den Grundzustand des Pa^{234} darstellt.

II. Trennung des UZ vom UX.

Für die chemische Trennung des UZ (Pa) vom UX_1 (Th) wurde das Verfahren von Guy und Russell[4]) gewählt. Dabei war besonders zu berücksichtigen, dass, um für den magnetischen β-Spektrographen geeignete UZ-Präparate herzustellen, nur wenige mg Tantalsäure als Trägersubstanz verwendet werden durften. Eine dieser Bedingung angepasste Arbeitsvorschrift ist von E. Jacobi, der auch die chemischen Operationen ausführte, ausgearbeitet worden; sie wird an einem anderen Ort[28]) mitgeteilt werden.

Als Ausgangssubstanz standen einige Kilogramm UO_2 zur Verfügung, welche in Uranylnitrat, das hernach in Äther gelöst wurde, umgewandelt werden mussten. Das UX wurde mit Thorium als Trägersubstanz vom Uran getrennt, daraufhin das UZ vom UX_1 mit 2—5 mg Tantal als Trägersubstanz. Die Reinigung des UZ von Spuren Thorium geschah schliesslich durch mehrmaliges Umschmelzen mit $KHSO_4$. Die Verunreinigung mit UX, d. h. das Verhältnis der Zahl der pro sec zerfallenden UX_1-Atome zur Zahl der pro sec zerfallenden UZ-Atome im Zeitpunkt der Trennung des UZ vom UX_1 konnte so bis auf 0,2% herabgedrückt werden. Um den Grad der Reinheit zu bestimmen, ist es nicht nötig, jedesmal das Abklingen der UZ-Aktivität abzuwarten. Da die β-Strahlung des nach wenigen Minuten mit dem UX_1 im Gleichgewicht befindlichen UX_2 sehr viel durchdringender ist als die UZ-β-Strahlung, erlaubt die Messung der β-Aktivität der UZ-Präparate mit einem sehr dünnwandigen Zählrohr (Zählrohrfenster bedeckt von 8 μ Al) mit und ohne vorgeschalteten Standardabsorber (28,3 mg/cm² Al) eine rasche Bestimmung der Reinheit dieser Präparate.

Mit Hilfe von (β,γ)-Koinzidenzmessungen (siehe V.) konnte die *absolute Intensität der* UZ-Präparate, die untereinander durch Messung der Intensität ihrer γ-Strahlung verglichen wurden, leicht bestimmt werden. Das intensivste Präparat, welches für die Messung des kontinuierlichen β-Spektrums verwendet wurde, enthielt zur Zeit der Abtrennung $1{,}2 \cdot 10^9$ UZ-Atome, entsprechend $N = 35000$ Zerfallsprozessen des UZ pro sec. Legen wir für das Verzweigungsverhältnis $UZ : UX_2$ den Wert $\varkappa = 1{,}5 \cdot 10^{-3}$ (Feather und Bretscher) zugrunde, so ist dies die Zahl der UZ-Atome, die sich mit 4,7 kg $UO_2(NO_3)_2 + 6\,H_2O$ im radioaktiven Gleichgewicht befinden; das Gewicht des in Äther gelösten Uranylnitrates betrug etwa 8 kg. Wird das Abklingen des UX_1 in der Zeit zwischen der Trennung des UX_1 vom Uran und der Trennung des UZ vom UX_1 berücksichtigt, so ergibt sich, dass bei den zahlreichen

Operationen, die erforderlich waren, um das UZ mit wenigen mg Trägersubstanz rein aus dem im Äther gelösten Uranylnitrat herauszuziehen, nur etwa 30% verloren gingen.

III. Das β-Spektrum des UZ.

Das Betaspektrum des UZ ist mit der Wilsonkammer von LECOIN[5]) gemessen worden; es ist offensichtlich komplex, wie dies auch die Absorptionskurve der UZ-β-Strahlen deutlich zeigt. Die Messung des UZ-β-Spektrums mit dem magnetischen Spektrographen erwies sich als recht mühsam, da die Intensität der aus dem zur Verfügung stehenden Ausgangsmaterial zu gewinnenden UZ-Quellen für diesen Zweck nur knapp ausreichend war. Der magnetische Spektrograph, der die Registrierung der Elektronen mit Koinzidenzzählrohren erlaubt, ist früher beschrieben worden (BRADT,

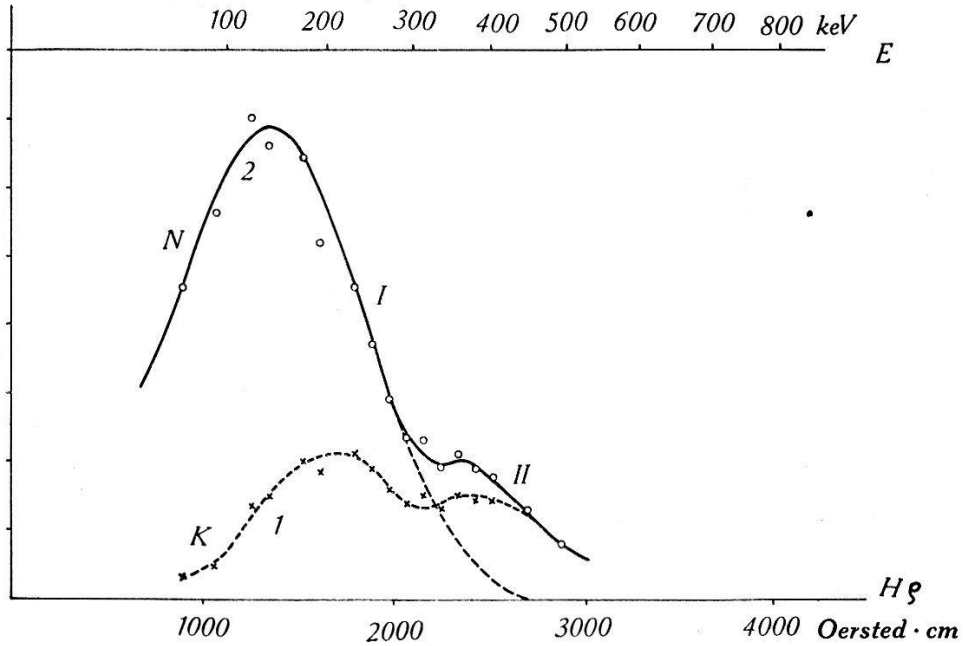


Fig. 1.
β-Spektrum des UZ.
1. Unkorrigierte Messwerte (Zählrohrkoinzidenzen). 2. Impulsspektrum.

HEINE und SCHERRER[6])). Die Messung des Spektrums durch Zählung der Koinzidenzen statt durch Zählung der Einzelstösse des von den Elektronen zuerst durchsetzten Zählrohrs erwies sich hier als vorteilhaft, da nur so der zu messende Effekt wesentlich grösser war als der Nulleffekt: die maximale Koinzidenzhäufigkeit mit UZ-Quelle betrug $K_{max} = 9$ Koinz./min, der Koinzidenz-Nulleffekt $K_0 = 1{,}6$ Koinz./min; hingegen betrug die maximale Einzelstosszahl $Z_{max} = 26$ Stösse/min, der Nulleffekt des einzelnen Zählrohrs $Z_0 = 16{,}3$ Stösse/min.

Um aus der gemessenen Koinzidenzhäufigkeit K (Fig. 1, Kurve 1), der Zahl der registrierten Koinzidenzen nach Abzug des Nulleffekts und Korrektur bezüglich des zeitlichen Abfalls der UZ-Intensität, die Energieverteilung der Zerfallselektronen N zu ermitteln, sind folgende Umrechnungen notwendig:

1. Infolge *Streuung* in der Eintrittsfolie und im ersten Zählrohr selbst ist das Verhältnis K/Z unterhalb von etwa 500 keV von der Energie abhängig. Die Koinzidenzzahl K wurde daher umgerechnet auf die Einzelstosszahl Z des von den Elektronen zuerst durchsetzten Zählrohrs. Zu diesem Zweck wurde mit einer intensiven UX_2-Quelle das Verhältnis K/Z in Funktion von $H\varrho$ gemessen.

2. Um auch die *Absorption* zu berücksichtigen, wurden die so ermittelten Werte der Stosszahl Z dividiert durch die Durchlässigkeit der das Zählrohrpaar abschliessenden Cellophanfolie von 1,1 mg/cm² Dicke. Die Durchlässigkeit derselben wurde nach MARTIN und TOWNSEND[7]) berechnet.

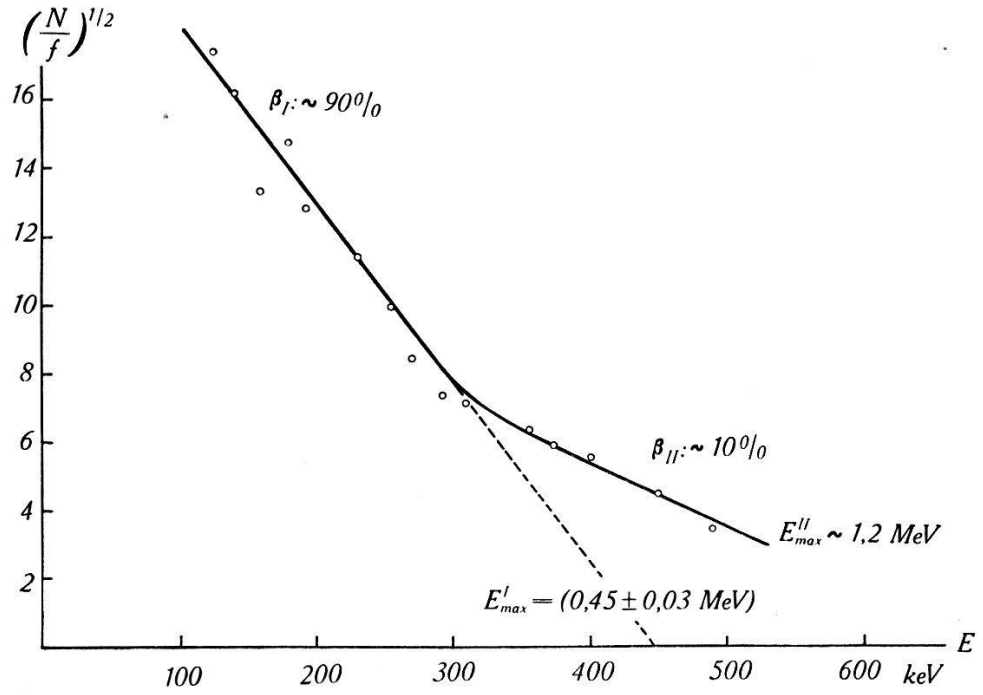


Fig. 2.
β-Spektrum des UZ. Fermidiagramm.

3. Um die Impulsverteilung der β-Strahlen zu erhalten, wurden die korrigierten Stosszahlen schliesslich noch durch $H\varrho$ dividiert.

Danach ergibt sich die Impulsverteilung der UZ-β-Strahlen der Kurve 2 von Fig. 1. Unterhalb von etwa 150 keV machen sich noch störende Effekte, wie Rückstreuung am Präparatträger

(Kohle), bemerkbar, die hier nicht berücksichtigt wurden. Das Maximum des Spektrums liegt bei etwa 140 keV. Die Zusammensetzung des β-Spektrums aus *zwei Partialspektren* ist offensichtlich.

Im *Fermidiagramm* (Fig. 2) gruppieren sich bis $E = 300$ keV die korrigierten Messwerte um eine Gerade. Die Verlängerung dieser Fermigeraden bis zum Schnitt mit der Abszissenachse ergibt als obere Grenze dieses weichen Partialspektrums I, das nach Ausweis des Sargent-Diagramms (KOYIMA[8])) einem *erlaubten* Übergang entspricht, den Energiewert

$$E_I = (0{,}45 \pm 0{,}03)\,\text{MeV}$$

Die maximale Energie des schwachen energiereichen Partialspektrums II konnte aus Intensitätsgründen nicht bestimmt werden. Nach FEATHER und BRETSCHER beträgt die Reichweite der UZ-Betastrahlen in Aluminium $R \sim 0{,}5\ \text{g/cm}^2$, entsprechend einer oberen Grenze des Partialspektrums II von

$$E_{II} = 1{,}2\ \text{MeV}^{*})$$

Der gleiche Wert ergibt sich, wenn wir zu E_I die mittlere Quantenenergie der sehr homogenen γ-Strahlung (siehe IV) addieren. Das *Intensitätsverhältnis* der Partialspektren I und II ist nach Fig. 1 etwa gleich 10 : 1.

IV. Die γ-Strahlung des UZ.

Die Absorptionskurve der UZ-γ-Strahlung fällt nach FEATHER und BRETSCHER exponentiell mit dem Absorptionskoeffizienten $\mu_{Pb} = (0{,}087 \pm 0{,}005)\ \text{cm}^2/\text{g}$ ab, entsprechend einer Quantenenergie von $(0{,}80 \pm 0{,}05)$ MeV (GENTNER[9])). Diese Energie ist nun gerade von der Grössenordnung der Energie derjenigen γ-Strahlung, deren K- und L-Konversionslinien im β-Spektrum des UX beobachtet worden sind (BRADT, HEINE und SCHERRER[6])). Aus Intensitätsgründen können diese 0,782 MeV- und 0,822 MeV-γ-Linien nicht *allein* dem UZ zugeordnet werden. Es blieb zu untersuchen, ob das UZ diese Linien überhaupt emittiert, wie dies von MARSHALL[10])

*) FEATHER und BRETSCHER stellen zwar fest, dass bei Analyse des UZ-Spektrums in zwei Partialspektren die Absorptionskurve der β-Strahlen relativ am besten wiedergegeben wird durch eine Superposition zweier Standard-Absorptionskurven, die einer Analyse in Partialspektren von $E_I = 0{,}56$ MeV und $E_{II} = 1{,}55$ MeV Maximalenergie im Intensitätsverhältnis 17 : 1 entspricht. Dieser Wert von E_{II} ist aber entschieden zu hoch, da eine intensive 1,0 MeV-Komponente der UZ-Gammastrahlung (entsprechend der Differenz der Maximalenergien) nicht beobachtet wird (siehe IV.).

angenommen wird, oder ob sie ausschliesslich vom isomeren UX_2 ausgesandt werden.

Letzteres muss von vornherein als wahrscheinlich gelten, da infolge der, zur Erklärung der langen Lebensdauer τ_γ des metastabilen Zustands anzunehmender Drehimpulsdifferenz $J_{UZ} - J_{UX_2} = 5\hbar$ (siehe IX) der β-Übergang zum *gleichen* angeregten Niveau des U_{II} für eines der beiden Isomere UZ und UX_2 hoch verboten sein sollte.

Auffallend[6]) an den 0,782 MeV- und 0,822 MeV-γ-Linien des UX ist ihre ausserordentliche grosse Konversionswahrscheinlichkeit $N_K^e/N^q \geqq 0{,}36$, $N_L^e/N^q \geqq 0{,}10$: obwohl *höchstens* etwa $N^q = 1{,}2 \cdot 10^{-2}$ Quanten dieser Energie vom UX pro Zerfall ausgesandt werden, beträgt die Zahl der aus der K-Schale ausgelösten Konversionselektronen $N_K = 4{,}3 \cdot 10^{-3}$, die Zahl der aus der L-Schale ausgelösten Konversionselektronen $N_L = 1{,}2 \cdot 10^{-3}$ Elektronen pro Zerfall. UZ emittiert (siehe V) beim normalen β-Zerfall (Partialspektrum I) sukzessiv nacheinander zwei Quanten von etwa 0,8 MeV. Gehörte eines dieser Quanten zur 0,782 MeV- oder zur 0,822 MeV-Linie, so müssten pro Zerfall des UZ etwa 0,3 K-Konversionselektronen von 0,666 MeV resp. 0,706 MeV ausgesandt werden. Eine so ungemein intensive β-Linie bekannter Energie wäre natürlich auch mit einer verhältnismässig schwachen Quelle im magnetischen Spektrographen leicht nachweisbar.

Um diese Frage zu entscheiden, wurde mit einer UZ-Quelle, deren Intensität von der gleichen Grössenordnung war wie die Intensität der für die Messung des kontinuierlichen UZ-β-Spektrums verwendeten Quelle, nach solchen Linien gesucht. Aber weder bei 0,666 MeV, noch bei 0,706 MeV, noch überhaupt im Bereich 0,65 MeV bis 0,90 MeV konnte auch nur eine Andeutung einer intensiven Konversionslinie beobachtet werden. Die 0,782 MeV- und 0,822 MeV-γ-Strahlung ist demnach *nur dem* UX_2, nicht auch dem UZ zuzuordnen.

Aus dem Absorptionskoeffizienten lässt sich für die Quantenenergie der UZ-γ-Strahlung nur ein mittlerer Energiewert entnehmen. Die Energien der verschiedenen Komponenten der UZ-γ-Strahlung könnten sehr beträchtlich voneinander abweichen, ohne dass sich dies in der Absorptionskurve in einem merklichen Abweichen vom exponentiellen Verlauf bemerkbar machen würde (siehe z. B. Roberts, Downing und Deutsch[11])). Eine Methode, die nicht nur eine mittlere Energie, sondern auch die Energie der härtesten Komponente zu bestimmen gestattet, ist die Messung der Absorption der Comptonelektronen, die durch die γ-Strahlung aus einer Aluminiumplatte ausgelöst werden, nach Bothe (Fig. 3). Wird

die Zahl der Koinzidenzen der beiden Elektronenzählrohre in Funktion der Dicke d der zwischen sie eingeschalteten Absorber aufgetragen, so ist die Halbwertsdicke dieser Absorptionskurve ein Mass für die mittlere Energie der γ-Strahlung; der Endpunkt der Kurve,

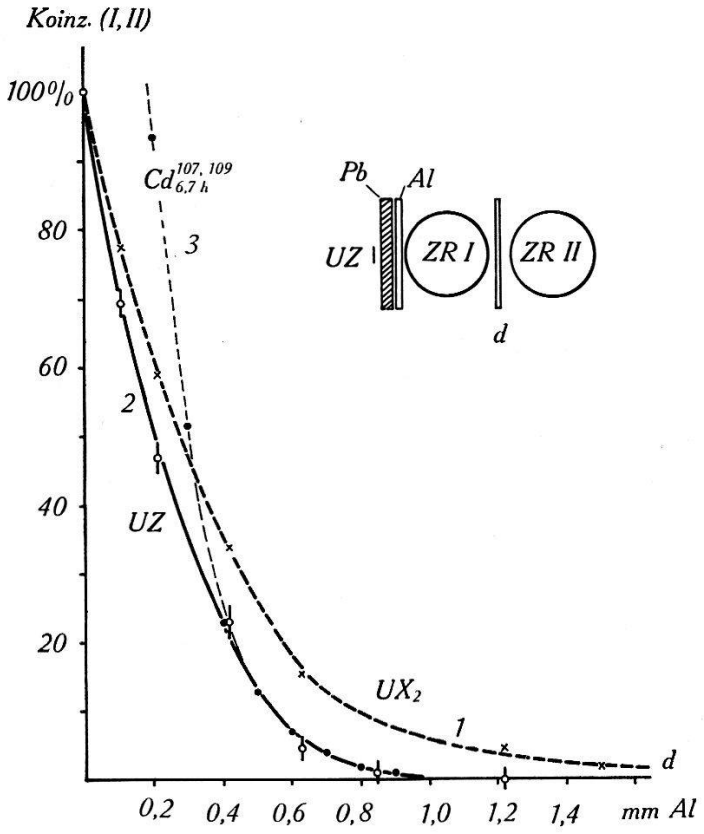


Fig. 3.
Absorption der Compton-Elektronen der UZ- und der UX_2-γ-Strahlung.

d. h. die Reichweite der Sekundärelektronen, ist ein Mass für die Energie der härtesten Komponente. Die Beziehung zwischen der Quantenenergie und der Reichweite der Sekundärelektronen (Curran, Dee und Petrzilka[12])) ist praktisch genau linear. Sie wurde für die verwendete Anordnung (Aluminium-Zählrohre von 104 μ Wandstärke, 2,5 cm Durchmesser in 3 cm Achsendistanz) festgelegt durch die Bestimmung der Reichweite $R = (4{,}25 \pm 0{,}1)$ mm Al der Sekundärelektronen der 2,62 MeV-γ-Strahlung des ThC″ und der Reichweite $R = (1{,}25 \pm 0{,}05)$ mm Al der Sekundärelektronen der 0,846 MeV-γ-Strahlung des 6,7 h-$Cd^{107,109}$. Die durch diese Messpunkte gelegte Gerade fällt zusammen mit der Eichgeraden von Curran, Dee und Petrzilka.

Fig. 3 zeigt, dass die γ-Strahlung des UZ entschieden weicher ist als die γ-Strahlung des isomeren UX_2. Nehmen wir für die letztere nach Stahel und Coumou[13]) einen mittleren Energiewert von

0,95 MeV an, so ergibt sich für die UZ-γ-Strahlung aus dem Vergleich der Halbwertsdicken eine mittlere Energie von $\overline{E}_\gamma = 0{,}75$ MeV, in Übereinstimmung mit dem durch Absorptionsmessung der γ-Strahlung bestimmten Wert $(0{,}80 \pm 0{,}05)$ MeV. Die Reichweite der UZ-Comptonelektronen konnte nicht genau bestimmt werden, da für eine solche Messung die zur Verfügung stehende UZ-Quelle nicht intensiv genug war. Der Vergleich der Absorptionskurve der UZ-Comptonelektronen (Kurve 2 der Fig. 3) mit der Absorptionskurve der Comptonelektronen der γ-Strahlung des 6,7 h-$Cd^{107,109}$ (0,846 MeV Kern-γ-Strahlung plus 0,51 MeV Annihilationsstrahlung, Kurve 3 der Fig. 3) zeigt, dass die Energie der härtesten Komponente der UZ-γ-Strahlung etwa 0,80 MeV bis 0,85 MeV beträgt. Die UZ-γ-Strahlung ist also verhältnismässig homogen.

Für die *Reichweite der Comptonelektronen der UX_2-γ-Strahlung* (nur der Anfang der Absorptionskurve der Sekundärelektronen ist in Fig. 3, Kurve 1 wiedergegeben) ergibt die Messung den Wert $R = (2{,}35 \pm 0{,}1)$ mm Al, entsprechend einer Energie der härtesten Komponente der UX_2-γ-Strahlung von $E = (1{,}50 \pm 0{,}05)$ MeV. Zum gleichen Energiewert führt die mit einem zwischen den Koinzidenzzählrohren befindlichen Absorber von $d = 0{,}8$ mm Al durch Variation der Dicke des zwischen der Quelle und dem Zählrohrpaar befindlichen Bleifilters bestimmte Absorptionskurve der härtesten Komponente der UX-γ-Strahlung. (Mit $d = 0$ ergibt eine gleiche Absorptionsmessung den einer Energie von 0,95 MeV entsprechenden Absorptionskoeffizienten.) Da die Intensität der 1,5 MeV-Komponente erheblich grösser ist als die nach Knipp und Uhlenbeck theoretisch berechnete Intensität des Spektrums der inneren Bremsstrahlung oberhalb 1 MeV (siehe[6])), so ist diese Komponente als Kern-γ-Strahlung (γ-Linie) anzusehen.

V. Die Bestimmung der absoluten Intensität der UZ-γ-Strahlung durch (β, γ)-Koinzidenzmessungen.

Die genaue Bestimmung der absoluten Intensität einer γ-Strahlung, d. h. der Anzahl der pro Zerfall ausgesandten Quanten, kann in einfachen Fällen mit Hilfe von (β, γ)-Koinzidenzmessungen ausgeführt werden. Da die γ-Strahlung des UZ weitgehend homogen ist, und da bei Vorschaltung dünner Absorberfolien vor das 8 μ-β-Zählrohr die (β, γ)-Koinzidenzrate $\frac{K_{\beta,\gamma}}{Z_\beta}$ unverändert bleibt, kann diese Methode beim UZ angewandt werden.

Es sei:

N = die Zahl der pro sec im aktiven Präparat zerfallenden UZ-Atome.
f = die Zahl der im Mittel pro Zerfall vom UZ-Kern ausgesandten Quanten.

$\alpha = \frac{\Omega}{4\pi}$ der relative, von Quelle und Zählrohr aufgespannte Raumwinkel.
$\varepsilon =$ die mittlere Sensibilität des γ-Zählrohrs für die UZ-0,8 MeV-γ-Strahlung.
$d =$ die effektive Wandstärke des γ-Zählrohrs.
$w_\gamma = \alpha \varepsilon e^{-\mu d}$ die Wahrscheinlichkeit, dass ein γ-Quant im γ-Zählrohr registriert wird.
$w_\beta =$ die Wahrscheinlichkeit, dass ein emittiertes Elektron im β-Zählrohr registriert wird.

Dann ist

$$Z_\beta = N w_\beta$$
$$Z_\gamma = N f w_\gamma = N f \alpha \varepsilon e^{-\mu d}$$

Die Zahl der (β, γ)-Koinzidenzen hängt natürlich von der Art der Kopplung der β- mit den γ-Strahlen ab. Nehmen wir vorderhand an, dass *jeder* β-Zerfall zur Aussendung von f Quanten führt, so ist in diesem Fall

$$K_{\beta,\gamma} = N w_\beta \cdot f w_\gamma$$

Aus den drei zu messenden Grössen Z_β, Z_γ und $K_{\beta,\gamma}$ lassen sich also in diesem einfachsten Fall N, w_β und $f \cdot w_\gamma$ berechnen:

$$\frac{K_{\beta,\gamma}}{Z_\gamma} = w_\beta \tag{1}$$

$$\frac{K_{\beta,\gamma}}{Z_\beta} = f\, w_\gamma \tag{2}$$

$$\frac{Z_\beta Z_\gamma}{K_{\beta,\gamma}} = N \tag{3}$$

Zum Nachweis der β-Strahlen wurde ein Zählrohr verwendet, welches ein mit einer 8 μ-Aluminiumfolie verschlossenes grosses Fenster besitzt. Als γ-Zählrohre wurden sowohl Zählrohre mit Bleikathode als auch Zählrohre mit Messingkathode, die noch mit

Tabelle 1

γ-Zählrohr mit Messingkathode.

Messreihe	Z_β (min^{-1})	Z_γ (min^{-1})	$K_{\beta,\gamma}$ (min^{-1})	$\frac{K_{\beta,\gamma}}{Z_\gamma} = w_\beta$	N (sec^{-1})	$10^3 \cdot f w_\gamma$
1	6 330	77	7,4 ± 0,3	0,096	1 100	1,17 ± 0,04
2	17 700	239	19,5 ± 1,4	0,082	3 600	1,10 ± 0,08
3	24 200	260	28,2 ± 1,5	0,108	3 740	1,17 ± 0,05
						$f \cdot w_\gamma = 1{,}17 \pm 0{,}03 \cdot 10^{-3}$

einem 1 mm-dicken Bleiblech umhüllt waren, verwendet. Das UZ befand sich mit einigen mg Ta_2O_5 auf einem Stück Filterpapier zwischen den beiden Zählrohren in einem Abstande vor dem Fen-

ster des β-Zählrohrs, der das Dazwischenschieben von Al-Folien gestattete. Tabelle 1 gibt das Resultat von drei verschiedenen Messreihen, bei denen sich die UZ-Quelle jeweils in etwas verschiedenem Abstande vor dem β-Zählrohr befand, wieder. Die Daten sind bezüglich des Nulleffekts, des zeitlichen Abklingens der Intensität, der geringen Verunreinigung mit UX, der zufälligen Koinzidenzen ($\tau = 2 \cdot 10^{-7}$ sec; siehe BRADT und SCHERRER[14])) korrigiert. Der sehr kleine Beitrag ($\sim 1\%$) der (γ, γ)-Koinzidenzen ist von der Zahl der beobachteten Koinzidenzen ebenfalls abgezogen.

Der Raumwinkel berechnet sich nach der Formel von NORLING[15]) zu $\alpha = 0{,}222$; der Absorptionsfaktor ist mit $\frac{\mu}{\varrho} = 0{,}087$ cm²/g Pb für Zählrohrwand + Bleimantel $e^{-\mu d} = 0{,}79$. Für die Zählrohrsensibilität setzen wir nach v. DROSTE[16]) und BRADT[17])

$$\varepsilon = (3{,}8 \pm 0{,}4) \cdot 10^{-3}$$

Damit berechnet sich die Nachweiswahrscheinlichkeit eines UZ-γ-Quants zu $w_\gamma = (0{,}66 \pm 0{,}07) \cdot 10^{-3}$, und nach dem Resultat von Tabelle 1 ergibt sich somit

$$\underline{f = (1{,}8 \pm 0{,}2) \text{ Quanten/Zerfall}.}$$

Die Unsicherheit dieses Werts liegt in der Unsicherheit des Werts der Zählrohrsensibilität ε. Vom UZ werden also im Mittel nahezu zwei Quanten pro Zerfall ausgesandt.

Von FEATHER und BRETSCHER ist die absolute Intensität der UZ-γ-Strahlung durch Vergleich des Verhältnisses von β- und γ-Aktivität mit UZ und mit dem bekannten $MsTh_2$ zu $f = (1{,}50 \pm 0{,}25)$ Quanten/Zerfall bestimmt worden.

Das obige Resultat, das Ergebnis von Abschnitt VI, dass $f = \frac{1}{w_\gamma} \frac{K_{\beta,\gamma}}{Z_\beta}$ unverändert bleibt, wenn die weichsten β-Strahlen durch dünne Aluminiumfolien absorbiert werden und die Tatsache, dass beim UZ keine 1,5 MeV-γ-Strahlung beobachtet wird, zeigen, dass *jeder* mit dem weichen Partialspektrum gekoppelte UZ-Zerfall zur Emission von zwei Quanten führt. Da die Differenz der Maximalenergien der beiden Partialspektren nur 0,75 MeV beträgt, ist der mit dem Partialspektrum II gekoppelte seltene Übergang mit der Emission von einem γ-Quant verbunden. Diese Verhältnisse sind in Fig. 9 dargestellt (siehe FEATHER und BRETSCHER[2])).

Die Messung des β-Spektrums ergab als Intensitätsverhältnis der beiden Partialspektren den ungefähren Wert 10 : 1; mit diesem

Wert kann jetzt nach Fig. 9 die Unsicherheit des experimentell bestimmten Werts von f, der dieses Schema bedingte, eingeschränkt werden:

$$f = 2 \cdot 0{,}9 + 1 \cdot 0{,}1 = 1{,}90$$

Setzen wir diesen Wert in die für ein einheitliches Spektrum streng richtige Gleichung (2) ein, so bleibt diese Gleichung immer noch in guter Näherung gültig, da die relative Intensität des Partialspektrums II klein ist. Die Sensibilität des Messingzählrohrs für die UZ-750 keV-γ-Strahlung berechnet sich daraus zu

$$\varepsilon_{UZ}^{Messing} = (3{,}6 \pm 0{,}2) \cdot 10^{-3}$$

was als korrigierter Wert der Zählrohrsensibilität zu betrachten ist.

Tabelle 2 gibt das Resultat zweier Messungen, die unter Verwendung von Zählrohren mit Bleikathode ausgeführt wurden, wieder. Bei diesen Messungen war der relative Raumwinkel $\alpha = (0{,}180 \pm 0{,}010)$, der Absorptionsfaktor $e^{-\mu d} = 0{,}86$.

Tabelle 2

γ-Zählrohr mit Bleikathode.

Messreihe	Z_β (min^{-1})	Z_γ (min^{-1})	$K_{\beta,\gamma}$ (min^{-1})	w_β	N (sec^{-1})	$10^3 \cdot f w_\gamma$
1	24 200	554	$52{,}7 \pm 1{,}7$	0,095	4 250	$2{,}18 \pm 0{,}07$
2	25 900	905	$56{,}4 \pm 0{,}9$	0,062	6 920	$2{,}18 \pm 0{,}04$
						$f \cdot w_\gamma = 2{,}18 \pm 0{,}04 \cdot 10^{-3}$

Aus diesem Wert für $f \cdot w_\gamma$ kann bei bekanntem ε wiederum f berechnet werden; da für Bleizählrohre die Sensibilität für 750 keV-Strahlung aber nicht genau bekannt ist, berechnen wir lieber aus dem gemessenen Wert von $f \cdot w_\gamma$ mit dem schon ermittelten Wert $f = 1{,}9$ die Sensibilität der Bleizählrohre für die UZ-γ-Strahlung:

$$\varepsilon_{UZ}^{Blei} = (7{,}4 \pm 0{,}5) \cdot 10^{-3}$$

Von diesem Wert werden wir später Gebrauch machen. Das mit der UZ-γ-Strahlung gemessene Verhältnis $\frac{\varepsilon_{Pb}}{\varepsilon_{Messing}} = 2{,}05$ ist in guter Übereinstimmung mit dem für 750 keV-γ-Strahlung nach v. Droste[16]) berechneten Wert

$$\frac{(\tau R_\tau + 0{,}6\, \mu R_\mu)_{Pb}}{(\tau R_\tau + 0{,}6\, \mu R_\mu)_{Cu}} = 2{,}0.$$

*

VI. Absorption der UZ-β-Strahlen.

Da die Absorptionskurve der UZ-β-Strahlen für grössere Absorberdicken von FEATHER und BRETSCHER genau bestimmt worden ist, wurde nur noch der Anfang der Absorptionskurve (0,004 g/cm² bis 0,1 g/cm² Al) mit dem 8 μ-β-Zählrohr sorgfältig gemessen. Die Absorptionsmessungen wurden mit zwei besonders reinen UZ-Präparaten ausgeführt, bei denen die Zahl der UX_2-Zerfallselektronen anfänglich nur 0,9% resp. 0,2% der Zahl der UZ-Zerfallselektronen betrug; das UZ befand sich mit einigen mg Tantaloxyd

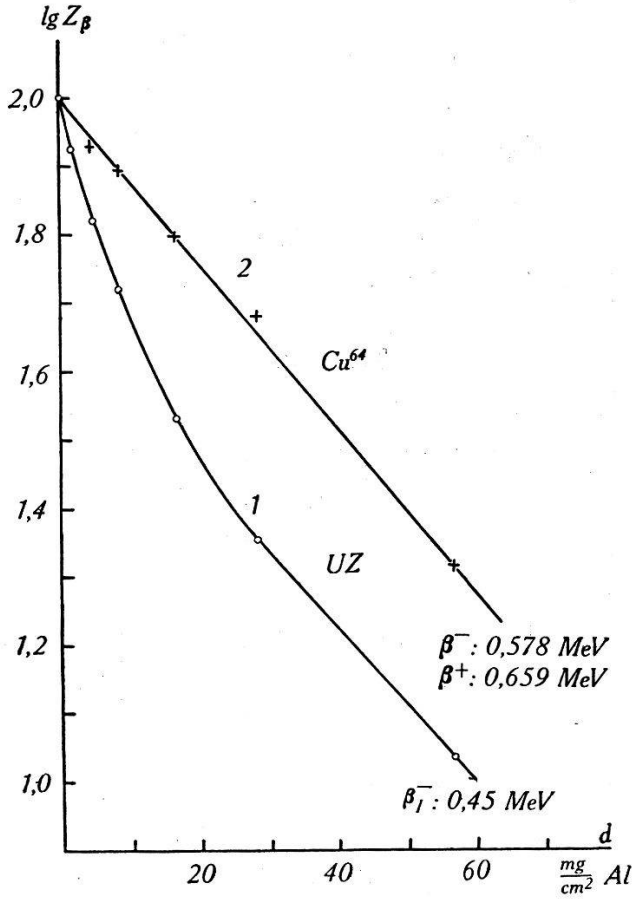


Fig. 4.

Verlauf der Absorptionskurven der β-Strahlen des UZ und des Cu^{64} bei kleinen Absorberdicken.

auf einem Filterpapier in 1,5 cm Abstand vor dem Zählrohrfenster. Der Restabsorber (8 μ Al plus 1,5 cm Luft) hatte also eine Dicke von 4 mg/cm². In Übereinstimmung mit FEATHER und BRETSCHER zeigt sich, dass zwischen 20 mg/cm² und 60 mg/cm² die *Absorptionskurve der UZ-β-Strahlen* (Fig. 4, Kurve 1) durch einen einheitlichen Absorptionskoeffizienten von 25 cm²/g beschrieben werden kann. Unterhalb von 20 mg/cm² fällt die Absorptionskurve jedoch mit wachsender Absorberdicke viel rascher ab. (Sie kann etwa analy-

siert werden in zwei annähernd gleich intensive exponentielle Komponenten mit den Absorptionskoeffizienten 25 cm^2/g und 150 cm^2/g).

Der Vergleich der Absorptionskurve der UZ-β-Strahlen mit der unter gleichen Bedingungen gemessenen, auch bei kleinsten Absorberdicken noch exponentiellen Absorptionskurve der annähernd gleich energiereichen β-Strahlen des 12,8 h Cu^{64} (β^+: 0,659 MeV, β^-: 0,578 MeV Maximalenergie) (Fig. 4, Kurve 2) zeigt deutlich, dass im UZ-Spektrum die Anzahl äusserst weicher Elektronen verhältnismässig gross ist. Dies ist bei der hohen Kernladung des

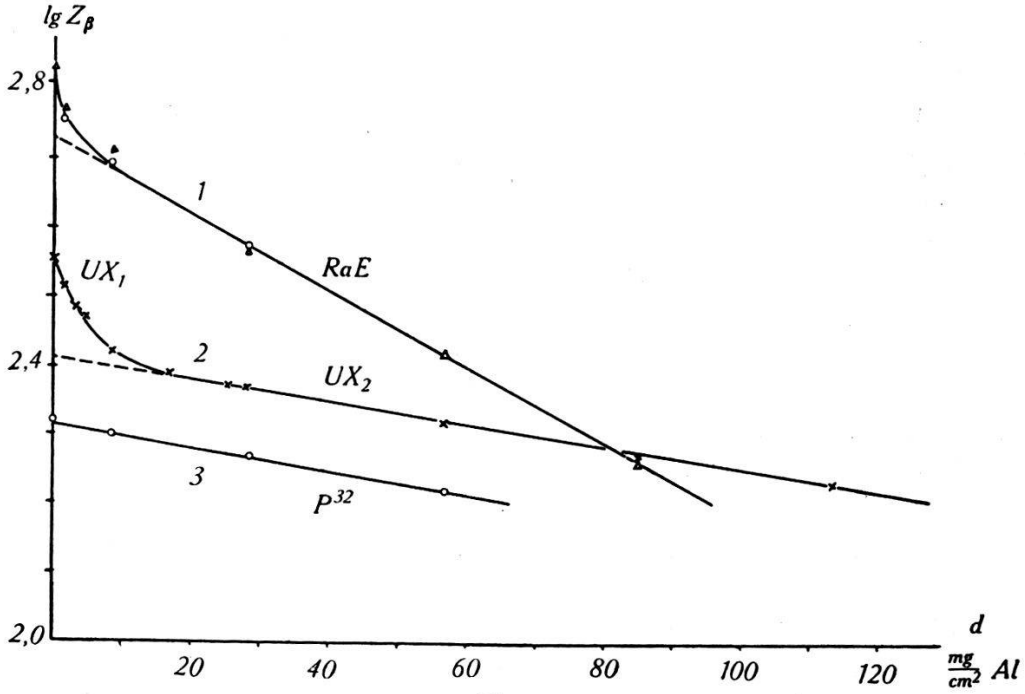


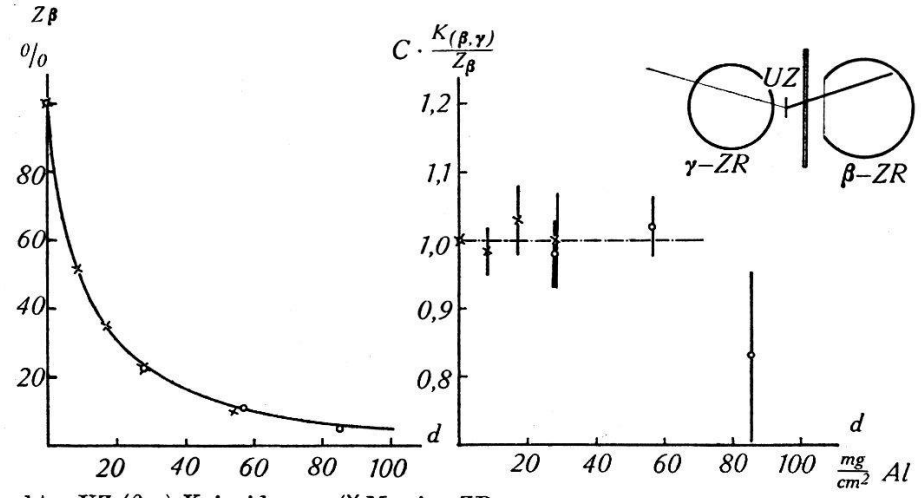
Fig. 5.

Absorptionskurven der β-Strahlen von UX, RaE und P^{32} bei kleinen Absorberdicken.

(RaE: ○ Unterlage 9 μ Platin △ Unterlage 6 μ Glimmer)

U_{II}, in dessen Feld sich die Zerfallselektronen des UZ bewegen, qualitativ auch zu erwarten. Es blieb aber noch zu prüfen, ob nicht, wie ein Vergleich mit der Absorptionskurve der (UX_1+UX_2)-β-Strahlen (Fig. 5, Kurve 2) nahelegen könnte, neben den beiden Partialspektren des UZ mit 0,45 MeV und 1,2 MeV Maximalenergie noch ein drittes, extrem weiches Partialspektrum vorhanden ist. Der Vergleich der Absorptionskurve der UZ-β-Strahlen mit der unter ebenfalls gleichen Bedingungen gemessenen Absorptionskurve der β-Strahlen des RaE (1,17 MeV Grenzenergie) (Fig. 5, Kurve 1) zeigt, dass aus dem Verlauf der UZ-Absorptionskurve unterhalb 20 mg/cm^2 sicher nicht ohne weiteres auf das Vorhandensein eines solchen dritten UZ-Partialspektrums geschlossen werden

darf. Auch das sicher einfache β-Spektrum des RaE ($Z_{RaF} = 84$) gibt Anlass zu einer Absorptionskurve, die unterhalb 10 mg/cm² eine merkliche Abweichung vom exponentiellen Verlauf zeigt, welche nicht allein der Rückstreuung an der Unterlage zugeschrieben werden kann (es wurden Platin (o) und Glimmer (△) als Unterlage verwendet), ebensowenig den α-Strahlen des Poloniums *). Da das UZ-β-Spektrum beträchtlich weicher ist als das β-Spektrum des RaE und die Kernladung des U_{II} höher als die des RaF, ist für



Messpunkte: UZ-(β,γ)-Koinzidenzen (X Messing ZR, ⊙ Blei ZR). Ausgezogene Kurve: Absorptionskurve der β-Strahlung.

Fig. 6.
Absorption der UZ-(β,γ)-Koinzidenzen.

das Partialspektrum I des UZ ein noch stärkeres Abweichen der Absorptionskurve vom exponentiellen Verlauf in diesem Bereich zu erwarten.

Durch Vergleich der *Absorptionskurve der* (β, γ)*-Koinzidenzen* (Vorschalten von Aluminiumfiltern vor das β-Zählrohr) mit der Absorptionskurve der β-Strahlen kann diese Frage noch näher geprüft werden. Die Koinzidenzrate $R_{\beta,\gamma} = \frac{K_{\beta,\gamma}}{Z_\beta} = w_\gamma \cdot f$ müsste bei Vorhandensein eines extrem weichen dritten Partialspektrums durch Einschalten von Absorbern von ca. 20 mg/cm² zwischen β-Zählrohr und UZ-Quelle verringert werden: Ein solches Partialspektrum wäre gekoppelt entweder mit zwei Quanten, deren Energiesumme grösser sein müsste als diejenige der beiden mit dem Partialspektrum I gekoppelten Quanten, oder aber mit drei

*) Unmittelbar vor der elektrolytischen Abscheidung des RaE war das Polonium nach der bekannten, von I. Curie [18]) beschriebenen Methode praktisch quantitativ aus der RaD Lösung entfernt worden. Zur Abschätzung der noch verbliebenen äusserst geringen Po-Verunreinigung wurde das Zählrohr im Proportionalitätsbereich betrieben.

Quanten. In beiden Fällen wäre die (β,γ)-Koinzidenzrate, d. h. $w_\gamma \cdot f$, für ein solches drittes Partialspektrum grösser als für das Partialspektrum I.

Das Experiment (Fig. 6) zeigt, dass die Koinzidenzrate $\frac{K_{\beta,\gamma}}{Z_\beta}$ durch Vorschalten sehr dünner Al-Folien vor das β-Zählrohr nicht geändert wird. Um die relative Sensibilität der Anordnung für γ-Strahlen verschiedener Quantenenergie zu variieren, wurden als γ-Zählrohre sowohl solche mit Messingkathode, als auch solche mit Bleikathode verwendet: in beiden Fällen ergab sich genau das gleiche Resultat. Das in Fig. 6 dargestellte Ergebnis der Absorptionsmessung der (β,γ)-Koinzidenzen spricht also gegen das Vorhandensein eines UZ-Partialspektrums, das noch wesentlich weicher als das Partialspektrum I wäre.

VII. Untersuchung der Richtungskorrelation der zwei sukzessiv emittierten UZ-γ-Quanten.

Im Abschnitt V wurde gezeigt, dass beim UZ-Zerfall in ca. 90% aller Fälle genau zwei Quanten ausgesandt werden; zu untersuchen blieb noch, ob eine Korrelation der Emissionsrichtungen dieser beiden Quanten nachweisbar ist.

Die Emissionsrichtungen zweier γ-Quanten, die von einem angeregten Kern sukzessive nacheinander emittiert werden, sind im allgemeinen voneinander nicht unabhängig. Zwischen ihnen besteht eine Korrelation, die von den Drehimpulsquantenzahlen der drei beteiligten Niveaus und dem Multipolcharakter der Strahlung abhängig ist. Für Dipol- und Quadrupolstrahlung ist diese Korrelation von Hamilton[19]) berechnet worden; die Wahrscheinlichkeit, dass der Winkel zwischen den Emissionsrichtungen der beiden Quanten zwischen ϑ und $\vartheta + d\vartheta$ liegt, ist gegeben durch den Ausdruck

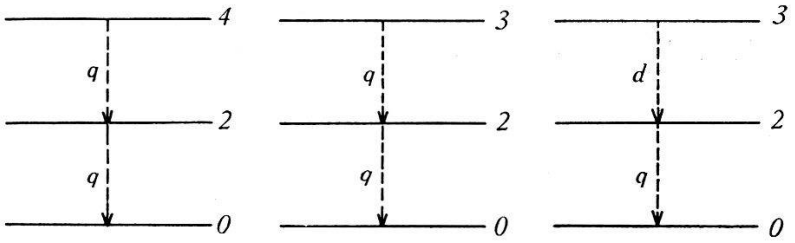
$$W(\vartheta) = c(1 + A\cos^2\vartheta + B\cos^4\vartheta)$$

wobei die Koeffizienten A und B Polynome in den Drehimpulsquantenzahlen darstellen, die bei Hamilton graphisch aufgetragen sind. Die experimentelle Bestimmung von

$$S = \frac{W(\pi) - W\left(\frac{\pi}{2}\right)}{W\left(\frac{\pi}{2}\right)} = 1 + A + B$$

erleichtert also die Zuordnung von Drehimpulsquantenzahlen zu den beteiligten Niveaus (Kikuchi, Watase und Itoh[20])).

Beim UZ ist nur eine schwache Richtungskopplung der beiden sukzessiv emittierten Quanten zu erwarten, wenn, wie wir annehmen müssen (siehe IX), das durch den erlaubten β-Zerfall des UZ angeregte Niveau N (Fig. 9) einen hohen Drehimpuls besitzt. In



$$S = \frac{W(\pi) - W(\pi/2)}{W(\pi/2)} = +0{,}17 \qquad S = -0{,}23 \qquad S = -0{,}10$$

Fig. 7.

Richtungskorrelation sukzessiv emittierter γ-Quanten nach HAMILTON. (d Dipol-, q Quadrupolstrahlung).

Fig .7 sind drei mögliche Fälle, bei denen das mittlere Niveau M die Drehimpulsquantenzahl 2 besitzt, mitsamt den theoretisch zu erwartenden Werten von S angegeben. Besitzt das UZ-Niveau des

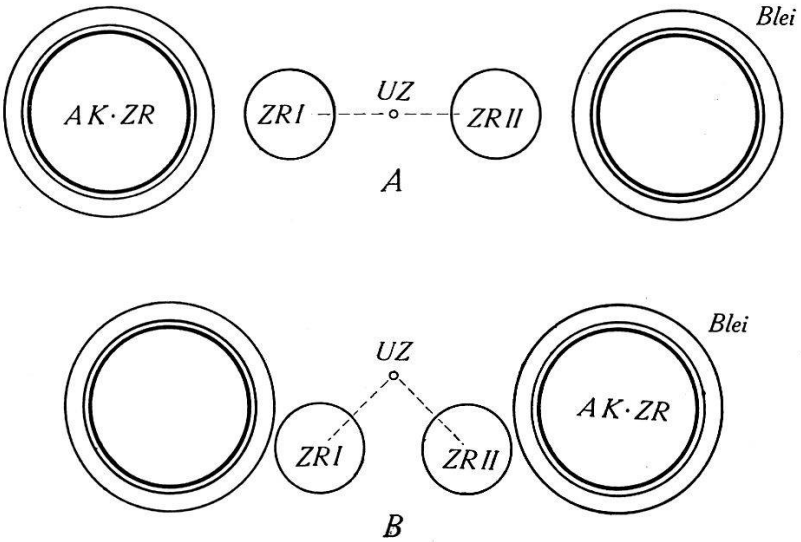


Fig. 8.

Zählrohr-Anordnungen zur Messung der Richtungskorrelation der sukzessiv emittierten UZ-γ-Quanten.

Pa^{234} die Drehimpulsquantenzahl 5, was zur Erklärung der langen Lebensdauer des angeregten isomeren UX_2 nach der Drehimpulstheorie anzunehmen notwendig ist, so ist dem Niveau M wahrscheinlich die Drehimpulsquantenzahl 3 zuzuordnen (siehe IX). Die Rechnung ist für diesen Fall zwar nicht ausgeführt, doch ist

eine noch schwächere Kopplung der Emissionsrichtungen als in den Fällen der Fig. 7 zu erwarten.

Um S experimentell zu ermitteln, werden (γ, γ)-Koinzidenzen in den beiden Anordnungen von Fig. 8 gemessen. In Anordnung A können Koinzidenzen nur durch Quantenpaare ausgelöst werden, deren Emissionsrichtungen einen Winkel von 180^0 (minus maximal 40^0 für Strahlen, die senkrecht auf den Zählrohrachsen stehen) bilden, in Anordnung B nur durch Quantenpaare, deren Emissionsrichtungen einen Winkel von 90^0 ($\pm$ maximal 40^0) bilden. Zur Messung werden Zählrohre mit Bleikathode verwendet, deren Achsen zusammen mit der linearen UZ-Quelle in einer horizontalen Ebene liegen. Der von Quelle und Zählrohr aufgespannte Raumwinkel beträgt $\alpha = 0{,}106$, die Sensibilität der Bleizählrohre für die UZ-γ-Strahlung $\varepsilon = 7{,}4 \cdot 10^{-3}$. Zur Verringerung des durch die Höhenstrahlung bewirkten Nulleffekts sind seitlich grosse, zur Abschirmung der UZ-γ-Strahlung von dicken Bleizylindern umhüllte Antikoinzidenzzählrohre angebracht (Bradt und Scherrer[14]).

Nulleffekt der Höhenstrahlung.

Anordnung A	Anordnung B
ohne Antikoinz. ZR $6{,}7 \pm 1{,}5$	$10{,}0 \pm 1{,}5$ Koinzidenzen/Stunde
mit Antikoinz. ZR $2{,}1 \pm 0{,}6$	$3{,}2 \pm 0{,}5$ Koinzidenzen/Stunde

Als Resultat von mehreren Versuchsreihen, in denen insgesamt etwa 600 UZ-(γ, γ)-Koinzidenzen gemessen wurden, ergibt sich

$$R_A(180^0) = (7{,}6 \pm 0{,}7) \cdot 10^{-4}$$
$$R_B(\ 90^0) = (8{,}1 \pm 0{,}5) \cdot 10^{-4}$$

Ein Unterschied der in beiden Anordnungen gemessenen (γ, γ)-Koinzidenzraten R, d. h. eine ausgeprägte Korrelation der Emissionsrichtungen, ist also, wie zu erwarten war, nicht festzustellen. Zur Abschätzung des Bereichs der mit diesem Ergebnis noch verträglichen Werte von S ist

$$\frac{R_A - R_B}{R_B} = (-0{,}06 \pm 0{,}09)$$

noch mit einem aus den geometrischen Daten zu berechnenden Faktor $\sim 1{,}4$ zu multiplizieren, der den notwendigerweise endlichen

Raumwinkel der Zählrohre berücksichtigt. Somit lautet das Resultat:

$$|S| = \left| \frac{W(\pi) - W\left(\frac{\pi}{2}\right)}{W\left(\frac{\pi}{2}\right)} \right| \lesssim 0{,}13 .$$

Vergleichen wir noch den experimentellen Wert der (γ, γ)-*Koinzidenzrate* (Mittelwert von R_A und R_B)

$$R_{exp} = (7{,}9 \pm 0{,}5) \cdot 10^{-4}$$

mit dem auf Grund des Niveauschemas der Fig. 9 zu erwartenden Wert

$$R_{ber} = \frac{1{,}8}{1{,}9} \cdot \alpha \varepsilon e^{-\mu d} = (6{,}4 \pm 0{,}4) \cdot 10^{-4} .$$

Die Übereinstimmung beider Werte ist recht befriedigend. Ob der Unterschied von ca. 20% (siehe auch FEATHER und DUNWORTH[3]) reell ist, ob also z. B. noch ein sehr geringer Prozentsatz der UZ-Zerfallsprozesse mit der sukzessiven Emission von drei Quanten verbunden ist, muss offengelassen werden.

VIII. Bestimmung des Verzweigungsverhältnisses UZ : UX_2 aus der relativen Intensität der UZ- und UX_2-γ-Strahlung.

Nach IX ist das Verzweigungsverhältnis UZ : UX_2 das Verhältnis der Wahrscheinlichkeit eines Übergangs $UX_2 \rightarrow UZ$ durch Emission eines γ-Quants bzw. Hüllenelektrons zur Wahrscheinlichkeit eines Übergangs $UX_2 \rightarrow U_{II}$ durch β-Zerfall:

$$\varkappa_{UZ:UX_2} = \frac{w_{\gamma+e}}{w_\beta} = \frac{\tau_\beta}{\tau_{\gamma+e}}$$

$\varkappa$ ist von HAHN[21]), von WALLING[22]) und von FEATHER und BRETSCHER bestimmt worden durch Vergleich der β-Aktivität eines von einer bestimmten Menge UX_1 chemisch abgetrennten UZ-Präparats mit der β-Aktivität des mit diesem UX_1 im Gleichgewicht befindlichen UX_2. Bei den mit Zählrohr ausgeführten und daher direktesten Vergleichsmessungen stellt wohl die Extrapolation der Absorptionskurve der UZ-β-Strahlen auf Absorberdicke Null den mit der relativ grössten Unsicherheit behafteten Faktor dar.

Bei bekannter Energie und Intensität der UX_2- und der UZ-γ-Strahlung kann das Verzweigungsverhältnis $\varkappa$ auch durch Vergleich der γ-Aktivitäten von UX_2 und UZ bestimmt werden. Wird die

γ-Strahlung der beiden Isomere unter gleichen Bedingungen gemessen, so ist

$$Z_{UZ} = N \cdot \varkappa f \alpha \varepsilon_{UZ}$$
$$Z_{UX_2} = N \cdot g \alpha \varepsilon_{UX_2}$$

(g = Zahl der pro Zerfall vom UX_2, $f = 1{,}9$ = Zahl der pro Zerfall vom UZ emittierten γ-Quanten). Also ist

$$\frac{\varkappa}{g} = \frac{1}{1{,}9} \cdot \frac{\varepsilon_{UX_2}}{\varepsilon_{UZ}} \cdot \frac{Z_{UZ}}{Z_{UX_2}}$$

Die Bestimmung des Verhältnisses der γ-Aktivitäten Z_{UZ}/Z_{UX_2} wurde wie folgt ausgeführt: Die γ-Aktivität einer wässrigen Lösung von $UX_1 + UX_2$ wurde unmittelbar nach quantitativer Ausfällung des UZ gemessen und anschliessend der zeitliche, dem nachgebildeten UZ zuzuschreibende Anstieg der γ-Strahlung verfolgt. Mehrere solcher Messungen wurden mit Eisen- und Messingzählrohren ausgeführt; zur Abschirmung der weichen UX_1-γ-Strahlung waren die Zählrohre von 2 mm Blei umgeben. Für das Verhältnis der Stosszahlen ergab sich der Wert

$$Z_{UZ}/Z_{UX_2} = 0{,}114 \pm 0{,}005 \,.$$

Damit wird

$$\varkappa/g = (0{,}060 \pm 0{,}003) \cdot \frac{\varepsilon_{UX_2}}{\varepsilon_{UZ}} \,.$$

Mit $\frac{\varepsilon_{UX_2}}{\varepsilon_{UZ}} = \frac{\varepsilon_{0{,}95\,\mathrm{MeV}}}{\varepsilon_{0{,}75\,\mathrm{MeV}}} = 1{,}4$ und $g = 1{,}4 \cdot 10^{-2}$ (Stahel und Coumou[13])) wird

$$\varkappa = 1{,}2 \cdot 10^{-3} \,,$$

in befriedigender Übereinstimmung mit dem Resultat von Feather und Bretscher $\varkappa = (1{,}5 \pm 0{,}15) \cdot 10^{-3}$.

IX. Niveauschema zum β-Zerfall des Pa^{234}. Die UX_2-UZ-Isomerie.

Im *Niveauschema* der Fig. 9 sind die Ergebnisse der Untersuchung des Pa^{234}-β-Zerfalls vereinigt. Die Maximalenergie des Partialspektrums I plus die Summe der Energien der beiden vom UZ sukzessive emittierten γ-Quanten ist $\sim 2{,}0$ MeV, also von der Grössenordnung aber sicher kleiner als die Maximalenergie des UX_2-β-Spektrums 2,32 MeV. UZ muss demnach als der Grundzustand des Pa^{234}, UX_2 als der angeregte metastabile Zustand angesehen werden, wie dies auch von Feather und Bretscher als

wahrscheinlich angenommen wurde. Für die Anregungsenergie des metastabilen Zustands UX_2 ist der Wert

$$E_{UX_2} - E_{UZ} =$$
$$= 2{,}32 - [(0{,}45 \pm 0{,}03) + 2 \cdot (0{,}75 \pm 0{,}05)]\,\text{MeV} = (0{,}4 \pm 0{,}1)\,\text{MeV}$$

zu erwarten.

Die lange Lebensdauer des UX_2 gegenüber dem Strahlungsübergang in den Grundzustand des Pa^{234} erfordert nach der Drehimpulstheorie der Kernisomerie einen grossen Unterschied zwischen den Drehimpulsen der Isomere UX_2 und UZ. Da der normale Zerfall des UX_1 der β-Übergang $UX_1 \rightarrow UX_2$ ist, muss demnach der direkte β-Übergang $UX_1 \rightarrow UZ$ so hoch verboten sein, dass seine Wahrscheinlichkeit gegenüber dem Übergang $UX_2 \rightarrow UZ$ vernachlässigbar klein ist.

Die Halbwertszeit τ des metastabilen UX_2 bezüglich des Übergangs in den Grundzustand durch Aussendung eines γ-Quants bzw. Hüllenelektrons berechnet sich also aus dem Verzweigungsverhältnis $\varkappa$ und der β-Halbwertszeit des UX_2 zu

$$\tau = \frac{\tau_\beta}{\varkappa} = 13\,\text{h}\,.$$

Die Wahrscheinlichkeit der Aussendung eines Hüllenelektrons wäre nach den Rechnungen von Dancoff und Morrison[23]) und von Hebb und Nelson[24]) für eine Anregungsenergie von $\sim 0{,}4$ MeV und eine Drehimpulsdifferenz von $l = 4$ oder 5 vergleichbar mit der Wahrscheinlichkeit der Aussendung eines γ-Quants. Insbesondere wäre die Wahrscheinlichkeit der Aussendung eines Elektrons der L-Schale mehrere Male grösser als die Wahrscheinlichkeit der Aussendung eines K-Elektrons. Im β-Spektrum des UX_2 müssten also Konversionslinien einer $(0{,}4 \pm 0{,}1)$ MeV-γ-Strahlung, deren absolute Intensität von der Grössenordnung 10^{-3} wäre, nachweisbar sein, wenn diese Vorstellung von der *UX_2-UZ-Isomerie* richtig ist.

Durch sorgfältige Untersuchung des UX_2-β-Spektrums im Energiebereich 0,20—0,45 MeV mit dem magnetischen Spektrographen (gleiches Auflösungsvermögen wie bei der Ausmessung der 0,8 MeV-Liniengruppe[6])) haben wir in der Tat solche Konversionslinien auffinden können. Um die Beimischung inaktiver Materie möglichst herabzusetzen, war das für diese Messung verwendete UX-Präparat, welches zuerst mit 10 mg Cer als Trägersubstanz vom Uran getrennt worden war, hernach noch mit 0,5 mg Thorium als Trägersubstanz vom Cer getrennt worden. Zwei sehr schwache β-Linien bei $H\varrho = 2400$ Oersted · cm und $H\varrho = 2463$ Oersted · cm

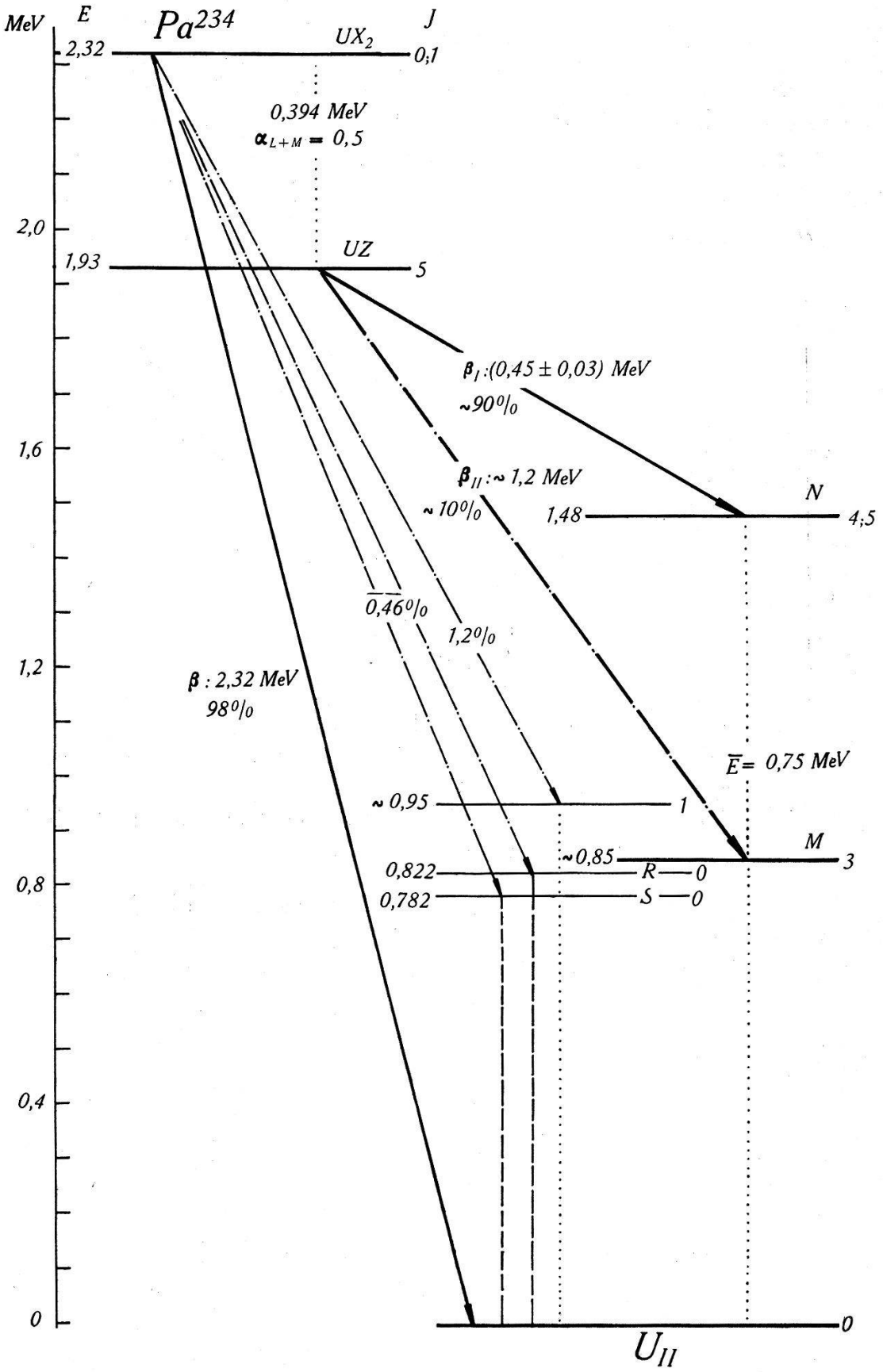


Fig. 9.
Termschema zum β-Zerfall des Pa^{234}_{91}

konnten nachgewiesen werden (Fig. 10). Innerhalb der Messgenauigkeit ist die Energiedifferenz $\Delta E = (15{,}2 \pm 2{,}2)$ keV dieser Linien gleich der Differenz der Bindungsenergien eines Elektrons in der L_I- und der M_I-Schale des Uranatoms $E_{L_I} - E_{M_I} = 16{,}2$ keV. Die aufgefundenen β-Linien sind also die L_I- und M_I-Konversionslinien einer γ-Strahlung von $(0{,}394 \pm 0{,}005)$ MeV Energie. Eine K-Kon-

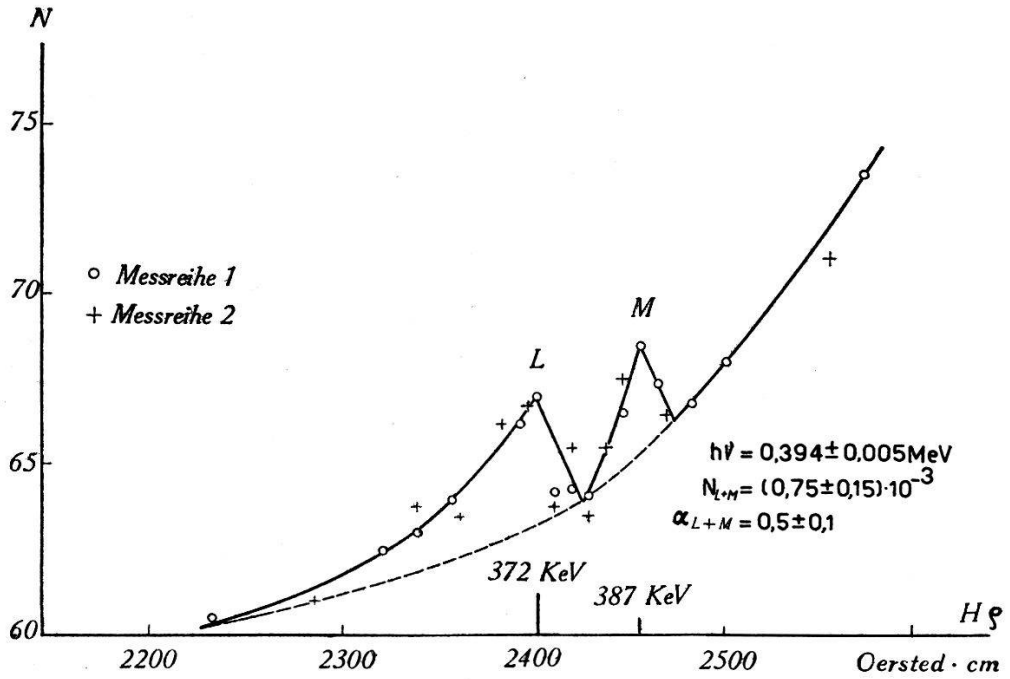


Fig. 10.

L_I- und M_I-Konversionslinien der beim Übergang $UX_2 \rightarrow UZ$ emittierten 0,394 MeV-γ-Strahlung im UX_2-β-Spektrum.

versionslinie dieser γ-Strahlung, nach der im Bereich um $H\varrho = 2005$ Oersted · cm gesucht wurde, konnte nicht aufgefunden werden. Aus dem Verhältnis der Flächen der Konversionslinien und des UX_2-Kontinuums im $H\varrho$-Diagramm wurde die Zahl der L- und M-Konversionselektronen pro Zerfall zu

$$N_{L+M} = (0{,}75 \pm 0{,}15) \cdot 10^{-3}$$

bestimmt. Eine sorgfältige Analyse der mit Pb- und Pt-Filtern unter Verwendung von Zählrohren mit Al- und Pb-Kathode gemessenen Absorptionskurve der UX-γ-Strahlung (vgl. auch Hahn und Meitner[29])) zeigt deutlich ausser der sehr intensiven Pa-L-Röntgenstrahlung, deren Ursache die starke Konversion der 0,092 MeV-UX_I-Linie in der L-Schale ist, einer weichen γ-Komponente mit dem Absorptionskoeffizienten $\mu = 19{,}6\ \text{cm}^{-1}$ Pb und der harten UX_2-γ-Strahlung das Vorhandensein einer schwachen Komponente von $\sim 0{,}4$ MeV ($\mu = 2{,}6\ \text{cm}^{-1}$ Pb). Die Intensität der 0,4 MeV-

Komponente beträgt nach Ausweis der Absorptionskurve nur ca. 2.10^{-3} Quanten/Zerfall; etwa die Hälfte dieser Intensität ist der inneren Bremsstrahlung zuzuordnen. Die 0,394 MeV-γ-Strahlung ist also sehr stark in der Elektronenhülle konvertiert und dazu in der L- und M-Schale viel stärker als in der K-Schale, so dass es sich um eine Strahlung hoher Multipolordnung handeln muss. Es ist also ganz offenbar diejenige Strahlung, durch welche das metastabile UX_2 in den Grundzustand UZ des Pa^{234} übergeht; die Anregungsenergie des UX_2 kann damit genau zu

$$\underline{E_{UX_2} - E_{UZ} = (0{,}394 \pm 0{,}005)\,\text{MeV}}$$

angegeben werden. Die Konversionswahrscheinlichkeit der 0,394 MeV-Linie in der L- und M-Schale bestimmt sich als das Verhältnis der Zahl der pro Zerfall ausgesandten L- und M-Konversionselektronen zum UZ : UX_2-Verzweigungsverhältnis $\varkappa = (1{,}5 \pm 0{,}15) \cdot 10^{-3}$ zu

$$\alpha_{L+M} = \frac{N^e_{L+M}}{N^q + N^e} = 0{,}5 \pm 0{,}1\,.$$

Da die Anregungsenergie ΔE des metastabilen Zustands nunmehr genau bekannt ist, kann die experimentell bestimmte Wahrscheinlichkeit eines Übergangs $UX_2 \rightarrow UZ$ durch Emission eines 0,394 MeV-γ-Quants

$$\lambda_\gamma^{\exp} = \frac{\lambda}{1 + N^e/N^q} = \frac{0{,}693}{13\,\text{h}} \cdot \frac{2}{3} = 0{,}036\,h^{-1}$$

$$\tau_\gamma^{\exp} = 19{,}5\,\text{h}$$

mit der nach der Drehimpulstheorie berechneten Übergangswahrscheinlichkeit (siehe z. B. HELMHOLZ[25]))

$$\lambda_\gamma = \left(\frac{\Delta E}{hc}\right)^{2l+1} \frac{e^2}{\hbar}\, \eta^2\, \frac{R^{2l}}{[1 \cdot 3 \cdot 5 \ldots (2l-1)]^2}$$

verglichen werden. Für $l = 4$ ergibt sich als theoretische Halbwertszeit $\tau_\gamma = 0{,}21$ sec, für $l = 5$, $\tau_\gamma = 14{,}9$ h*). Übereinstimmung mit dem experimentellen Wert ist also vorhanden für eine Differenz der Drehimpulsquantenzahlen

$$l = |J_{UX_2} - J_{UZ}| = 5 \quad (\tau_\gamma^{\text{theor}} = 14{,}9\,\text{h})$$

*) Nach dem FLÜGGEschen Modell des geladenen Flüssigkeitströpfchens berechnet sich mit der Schwingungszahl $N = 5$ die theor. Halbwertszeit zu

$$\tau_\gamma^{\text{theor}} = 32\ \text{sec.}$$

(FIERZ, Helv. Phys. Acta **16**, 365, 1943.)

Auch die für elektrische 2^5-Polstrahlung nach HEBB und NELSON[24]) berechneten Konversionswahrscheinlichkeiten $N_K^e/N^q = 0{,}063$, $N_L^e/N^q = 0{,}26$*) sind in Übereinstimmung mit dem experimentellen Resultat, dass die L-Konversionswahrscheinlichkeit von der Grössenordnung Eins ($N_L^e/N^q = 0{,}5$) und grösser als die K-Konversionswahrscheinlichkeit ist.

Für die Zuordnung von *Drehimpulsquantenzahlen* zu den einzelnen Kernniveaus ergibt sich folgendes: Da das UX_2-β-Spektrum von 2,32 MeV Grenzenergie einem erlaubten Übergang in den Grundzustand des (g,g)-Kerns $U_{II}(J_{U_{II}} = 0)$ entspricht, ist die Drehimpulsquantenzahl des UX_2 $J_{UX_2} = 0$, ev. 1. Da nach dem Vorangehenden $|J_{UX_2} - J_{UZ}| = 5$ anzunehmen ist, so ist also die Drehimpulsquantenzahl des Pa^{234}-Grundzustands UZ mindestens $J_{UZ} = 5$. Mit $J_{UZ} = 5$ ist die Drehimpulsquantenzahl des U_{II}-Niveaus N dann $J_N = 4$ oder 5 (erlaubtes Partialspektrum I). Der dem verbotenen UZ-Partialspektrum II entsprechende Punkt im Sargent-Diagramm liegt neben dem des RaE. Nach KONOPINSKI und UHLENBECK[27]) ist der RaE-β-Zerfall mit einer Drehimpulsänderung $\Delta J = 2$ verbunden. Für die Drehimpulsquantenzahl des Niveaus M ist also $J_M = 3$ als wahrscheinlicher Wert anzusehen.

Die Einordnung der *782 keV* und *822 keV Termdifferenzen* (Konversionslinien im β-Spektrum des UX_2) *in das Niveauschema des* U_{II} und die Zuordnung von Drehimpulsquantenzahlen zu diesen Niveaus stösst auf Schwierigkeiten. Der in Fig. 9 mit schwachen Linien eingezeichnete, zum UX_2-Zerfall gehörige Teil des Schemas ist daher nur als Versuch einer möglichen Einordnung zu betrachten. (γ,γ)-Koinzidenzmessungen (BRADT[17])) zeigten, dass UX_2 keine γ-Quanten in Kaskade emittiert: folglich muss U_{II} angeregte Niveaus bei 0,782 MeV und 0,822 MeV besitzen. Die im Vergleich zur Intensität der UX_2-γ-Strahlung relativ grosse Intensität der Konversionslinien im UX_2-Spektrum ($N^e/N^q \gtrsim 0{,}4$) kann durch zwei Annahmen erklärt werden: Entweder besitzen diese Niveaus eine sehr hohe Drehimpulsquantenzahl, oder aber den Drehimpuls Null, so dass die Aussendung eines γ-Quants vollständig verboten ist und der Übergang in den Grundzustand sich ausschliesslich durch Emission von Hüllenelektronen vollzieht. Bei hohen Drehimpulsquantenzahlen wäre aber das Auftreten der entsprechenden Konversionslinien auch im β-Spektrum des UZ zu erwarten, was nicht der Fall ist (siehe IV); wir halten die letztgenannte Möglichkeit $J = 0$ für die

*) Für die hohe Kernladungszahl $Z = 92$ gibt die angenäherte Rechnung von HEBB und NELSON nur die Grössenordnung der exakten theoretischen Konversionswahrscheinlichkeiten (vgl. TAYLOR und MOTT[26]) für $Z = 84$).

wahrscheinlichere. In diesem Fall sind die zu den Niveaus R und S führenden β-Übergänge nach Ausweis des Sargent-Diagramms als einfach verboten zu betrachten. Das Vorhandensein einer schwachen Kern-γ-Strahlung des UX_2, die sich aus mindestens zwei Komponenten von $\sim 0{,}9$ MeV und von 1,5 MeV (siehe IV) zusammensetzt, bedeutet, dass durch den UX_2-Zerfall noch andere Niveaus des U_{II}-Kerns angeregt werden. Da eine genauere Analyse der schwachen UX_2-Kern-γ-Strahlung noch nicht ausgeführt wurde, ist in Fig. 9 als Repräsentant dieser Niveaus nur ein einziges weiteres Niveau, entsprechend der *mittleren* Energie der UX_2-Kern-γ-Strahlung, eingezeichnet worden.

Herrn Dr. Jacobi sind wir für die Ausführung der chemischen Operationen, Herrn Dr. Heine für die Mithilfe bei den Messungen zu Dank verpflichtet. Dem Jubiläumsfonds der E.T.H. danken wir für die Überlassung von Mitteln.

Zürich, Physikalisches Institut der E.T.H.

Literatur.

1) Hahn, Ber. dtsch. chem. Ges. **54**, 1131 (1921).
2) Feather und Bretscher, Proc. Roy. Soc. **165**, 530, (1938).
3) Feather und Dunworth, Proc. Soc. **168**, 566, (1938).
4) Guy und Russell, Journ. Chem. Soc. **123**, 2618 (1923).
5) Lecoin, Journ. de phys. **9**, 81 (1938).
6) Bradt, Heine und Scherrer, Helv. Phys. Acta **16**, 455 (1943).
7) Martin und Townsend, Proc. Roy. Soc. **170**, 190 (1939).
8) Koyima, Proc. Phys. Math. Soc. Japan **22**, 384 (1940).
9) Gentner, Journ. de phys. **6**, 274 (1935).
10) Marshall, Proc. Roy. Soc. **173**, 391 (1939).
11) Roberts, Downing und Deutsch, Phys. Rev. **60**, 544 (1941).
12) Curran, Dee und Petrzilka, Proc. Roy. Soc. **169**, 269 (1939).
13) Stahel und Coumou, Physica **2**, 707 (1935).
14) Bradt und Scherrer, Helv. Phys. Acta **16**, 251 (1943).
15) Norling, Arkiv för Math. och Fys. N° 27, (1941.)
16) v. Droste, Zeitschr. f. Phys. **100**, 529 (1936).
17) Bradt, Helv. Phys. Acta **17**, 59 (1944).
18) Curie, Journ. de chim. phys. **22**, 471 (1925).
19) Hamilton, Phys. Rev. **58**, 122 (1940).
20) Kikuchi, Watase und Itoh, Proc. Phys. Math. Soc. Japan **23**, 568 (1941).
21) Hahn, Zeitschr. f. phys. Chemie **103**, 461 (1923).
22) Walling, Zeitschr. f. Physik **75**, 425 (1932).
23) Dancoff und Morrison, Phys. Rev. **55**, 122 (1939).
24) Hebb und Nelson, Phys. Rev. **58**, 486 (1940).
25) Helmholz, Phys. Rev. **60**, 415 (1941).
26) Taylor und Mott, Proc. Roy. Soc. **138**, 665 (1932).
27) Konopinski und Uhlenbeck, Phys. Rev. **60**, 308 (1941).
28) Jacobi, Helv. Chim. Acta **28**, 757 (1945).
29) Hahn und Meitner, Zeitschr. f. Physik **17**, 157 (1923).