**Zeitschrift:** Helvetica Physica Acta

**Band:** 17 (1944)

Heft:

**Artikel:** Kernreaktionen von Chlor mit Neutronen

Autor: Gibert, A. / Roggen, F. / Rossel, J.

**DOI:** https://doi.org/10.5169/seals-111496

#### 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:** 30.11.2025

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

## Kernreaktionen von Chlor mit Neutronen

von A. Gibert, F. Roggen und J. Rossel.

(24. I. 1944.)

Zusammenfassung. 1. Es werden die (n, p)- und  $(n, \alpha)$ -Reaktionen von Chlor untersucht. Mit schnellen Neutronen erhält man eine grosse Zahl schwer identifizierbarer Protonen- und  $\alpha$ -Teilchengruppen.

2. Die Energietönungen der (n, p)- und  $(n, \alpha)$ -Reaktionen liegen unterhalb 1,16 MeV, woraus folgt, dass die Masse von  $Cl^{35}$  kleiner sein muss als 34,98053.

3. Der Prozess  $Cl^{35}(n, p)S^{35}$  geht als einziger der untersuchten Reaktionen merklich auch mit langsamen Neutronen vor sich. Seine Energietönung beträgt  $0.52 \pm 0.04$  MeV, sein Wirkungsquerschnitt  $^{1}/_{4}$  desjenigen der Reaktion  $N^{14}(n, p)C^{14}$ .

4. Die mittlere Ionisationsarbeit in Chlor wurde für  $\alpha$ -Teilchen bestimmt. Sie beträgt 23,5  $\pm$  1,2 eV/Ionenpaar.

### Einleitung.

Eine Untersuchung der  $(n,\alpha)$ - und (n,p)-Reaktionen von Chlor schien aus zwei Gründen interessant: Erstens kann eine genaue Kenntnis der Energietönung des Prozesses  $\operatorname{Cl}^{35}(n,\alpha)\operatorname{P}^{32}$  mit Hilfe der gut bekannten Masse von  $\operatorname{P}^{32}$  einen Massenwert für  $\operatorname{Cl}^{35}$  liefern, über den sich widersprechende Messresultate vorliegen. Zweitens war die Frage die, ob der Prozess  $\operatorname{Cl}^{35}(n,p)$  S<sup>35</sup>, der als einer der wenigen (n,p)-Reaktionen exotherm verläuft (vgl. S. 99), trotz des relativ hohen Potentialwalls von Chlor, mit langsamen Neutronen einen merklichen Wirkungsquerschnitt zeigt.

Die gegebene Methode für solche Untersuchungen besteht in der Verwendung einer Ionisationskammer, die das umzuwandelnde Element in Gasform enthält. Die vorliegende Arbeit wurde mit einer chlorgefüllten Ionisationskammer und einem Proportionalverstärker ausgeführt. Zur Umwandlung des Chlors wurden Neutronen der (d-d)-Reaktion verwendet, einerseits mit der einheitlichen Energie 2,87 MeV, anderseits nach Verlangsamung in Paraffin.

Bei den betrachteten Reaktionen entstehen stark ionisierende Teilchen, Protonen oder α-Partikel und Restkerne. Die Zahl der bei einer Kernumwandlung entstehenden Ionen wird ermittelt; denn sie ist ein Mass für die zu bestimmende Gesamtenergie der gebildeten Teilchen. Um aber aus der gemessenen Ladung diese Energie zu berechnen, muss die mittlere Ionisationsarbeit in Chlor bekannt sein, d. i. die Energie, die es im Mittel zur Bildung eines Ionenpaares braucht. Diese für Chlor bis jetzt nicht bekannte Grösse wurde gemessen. Die diesbezüglichen Versuche werden im zweiten Teil dieser Arbeit beschrieben. Im ersten Teil sind die Untersuchungen über die Chlorreaktionen dargestellt unter Vorwegnahme des Messergebnisses für die Ionisationsarbeit.

#### ERSTER TEIL.

## Untersuchung der Kernreaktionen von Chlor.

#### A. Erwartete Reaktionen.

Chlor besitzt zwei stabile Isotope mit den Massenzahlen 35 und 37 und den prozentualen Häufigkeiten 75,4% und 24,6%. Die genauen Massenwerte wurden einerseits von japanischen Forschern<sup>1</sup>) massenspektrographisch bestimmt. Ihre Messungen werden unter Zugrundelegung neuerer Werte für H<sup>1</sup> und C<sup>12</sup> von Mattauch und Flügge im Isotopenbericht 1940<sup>2</sup>) und in ihren kernphysikalischen Tabellen (1942)<sup>3</sup>) übernommen:

 $\text{Cl}^{35} : 34, 97884 \pm 0,00019$  $\text{Cl}^{37} : 36, 97770 \pm 0,00009.$ 

Im Gegensatz dazu stehen Massenbestimmungen, die auf älteren massenspektrographischen und auf kernphysikalischen Messungen beruhen. So beträgt die von Aston<sup>4</sup>) spektrographisch bestimmte Masse von Cl<sup>35</sup>, nach Neuberechnung durch Mattauch und Flügge:

 $Cl^{35}: 34, 9810 \pm 0,0007.$ 

Aus der von Brasefield und Pollard<sup>5</sup>) gemessenen Energietönung von — 2,1 MeV des Prozesses S<sup>32</sup>  $(\alpha, p)$  Cl<sup>35</sup> ergibt sich ein Massenwert: Cl<sup>35</sup>: 34, 9805 + 0.0003.

Aus der Energietönung von 9,1 MeV für den Prozess  $Cl^{35}$   $(d,\alpha)$   $S^{33}$ , wie sie von Shrader und Pollard<sup>6</sup>) gemessen wurde, folgt

 $Cl^{35}: 34, 98093 \pm 0,00033.$ 

Auf diese Arbeiten stützen Mattauch und Flügge<sup>7</sup>) ihre Angabe im Isotopenbericht 1941; sie führen als sichersten Wert an:

 $Cl^{35}:34,~9807\pm0,0002.$ 

Eine weitere Massenbestimmung liegt vor von Pollard<sup>8</sup>) aus-Untersuchungen von (d,p)- und  $(d,\alpha)$ -Reaktionen. Er findet:

Aus diesen Angaben geht die schon erwähnte Tatsache hervor, dass der Wert der Chlormasse noch keineswegs gesichert ist, und dass insbesondere die aus kernphysikalischen Messungen gewonnenen Daten wesentlich höher sind als der neueste massenspektrographisch bestimmte Wert.

Prinzipiell können in der Ionisationskammer folgende 4 Reaktionen registriert werden:

$$Cl^{35} + n \longrightarrow S^{35} + H^1 + Q_1$$
 (1)  
 $P^{32} + He^4 + Q_2$  (2)

$$Cl^{37} + n \longrightarrow S^{37} + H^1 + Q_3$$
 (3)  
 $P^{34} + He^4 + Q_4$  (4)

Von den entstehenden Elementen sind die Elektronenstrahler S<sup>35</sup> und P<sup>32</sup> bekannt. Sie zerfallen auf folgende Weise:

$$S^{35} \longrightarrow Cl^{35} + e^- + q_1$$
  
 $P^{32} \longrightarrow S^{32} + e^- + q_2$ .

S³⁵ besitzt eine Halbwertszeit von 88 Tagen )-13). (Dass diese schon lange bekannte Periode wirklich dem S³⁵ und nicht S³⁵ zuzuordnen ist, wurde von Kamen¹³) gezeigt.) Das  $\beta$ -Spektrum ist von Libby und Lee¹⁰) magnetisch ausgemessen worden. Die obere Grenze des Spektrums beträgt

$$q_1 = 0.107 \pm 0.020 \ \mathrm{MeV}.$$

Es besteht nun ja bei jedem (n,p)-Prozess die Beziehung, dass die Summe von Energietönung der Reaktion und oberer Grenze des  $\beta$ -Spektrums des nachfolgenden radioaktiven Zerfalls (der zum Ursprungselement zurückführt) gleich der in Energie ausgedrückten Massendifferenz von Neutron und Wasserstoffatom ist. Im vorliegenden Fall gilt also:

$$Q_1+q_1=({
m n^1-H^1})=0.758~{
m MeV}\,;\,\,Q_1=0.758~{
m MeV}-q_1.$$

Mit dem angeführten Wert von  $0.107 \pm 0.020$  MeV für die obere Grenze des  $\beta$ -Spektrums von S<sup>35</sup> erhält man als zu erwartende Energietönung des Prozesses Cl<sup>35</sup> (n,p) S<sup>35</sup>:

$$Q_1 = 0.650 \pm 0.020 \ {
m MeV}.$$

Diese Reaktion kann energetisch also auch mit langsamen Neutronen vor sich gehen. Während aber O'Neal¹²) die 88-tägige Periode von S³⁵ nur mit schnellen Neutronen erregen konnte, fand Kamen¹³) eine starke Wirkung von thermischen Neutronen.

Vom Phosphorisotop P<sup>32</sup> sind Masse, Halbwertszeit und  $\beta$ -Spektrum gut bekannt<sup>3</sup>). Aus dem Massenwert P<sup>32</sup>: 31,98437 berechnet man folgende Energietönung des Cl<sup>35</sup> $(n,\alpha)$ -Prozesses, je nach der verwendeten Chlormasse:

 $Q_2 = -0.414 \text{ MeV}$ , Cl-Masse nach Okuda u.a.<sup>1</sup>)

 $Q_2 = 1,66$  MeV, Cl-Masse nach Pollard<sup>8</sup>)

 $Q_2 = 1{,}32$  MeV, Cl-Masse nach Isotopenbericht 1941<sup>7</sup>).

Die Halbwertszeit von P<sup>32</sup> beträgt 14,3 Tage, die obere Grenze des  $\beta$ -Spektrums 1,72 MeV. Der Prozess Cl<sup>35</sup>  $(n,\alpha)$  P<sup>32</sup> scheint mit langsamen Neutronen nicht merklich aufzutreten<sup>14</sup>). DieseTatsache braucht aber nicht zu bedeuten, dass der Prozess wirklich endotherm verläuft; es kann sein, dass er mit langsamen Neutronen wegen des relativ hohen Potentialwalls nur sehr unwahrscheinlich ist.

Im Gegensatz zu S<sup>35</sup> und P<sup>32</sup> sind die aus dem schweren Chlorisotop entstehenden radioaktiven Körper S<sup>37</sup> und P<sup>34</sup> nicht bekannt. Huber, Lienhard und Wäffler<sup>15</sup>) haben jedoch gefunden, dass mindestens einer davon nur unter der Einwirkung energiereicher Neutronen der Ra-Be-Quelle, nicht aber durch d-d-Neutronen mit 2,87 MeV entsteht und eine Periode von 14,7 sec besitzt.

Zusammenfassend kann man somit sagen, dass von den vier betrachteten Reaktionen höchstens drei mit d-d-Neutronen und mindestens eine mit langsamen Neutronen energetisch möglich sind.

### B. Apparatur.

# 1. Füllgas.

Bei der Wahl des Füllgases mussten folgende Bedingungen berücksichtigt werden. Das Gas soll, wenn möglich bei Zimmertemperatur, einen Druck von einigen Atmosphären besitzen; es darf keinen Wasserstoff enthalten, da sonst störende Rückstossprotonen auftreten und schliesslich sollte sein chemisches Verhalten nicht allzu aktiv sein. Es gibt jedoch keinen Stoff, der alle Bedingungen erfüllt; in Betracht kamen Tetrachlorkohlenstoff (CCl<sub>4</sub>), Phosgen (COCl<sub>2</sub>) und Chlor selbst. Tetrachlorkohlenstoff hätte eine Temperatur der Ionisationskammer von ungefähr 200° C

notwendig gemacht, wodurch Schwierigkeiten bei der Isolation und der Dichtung aufgetreten wären. Phosgen besitzt neben einem niedrigen Dampfdruck eine beträchtliche chemische Aktivität und eine sehr grosse Giftigkeit und bot somit keine entscheidenden Vorteile. Aus diesen Gründen wurde Chlor gewählt, wobei die grosse Reaktionsfähigkeit dieses Gases in Kauf zu nehmen war. Dafür besitzt Chlor den Vorteil eines bei Zimmertemperatur genügend hohen Dampfdruckes (ca. 6 Atm.). Das Chlor stammte aus Bomben, wo es in flüssigem Zustand aufbewahrt wurde\*). Die Zusammensetzung des Bombeninhaltes wurde von der Herstellerfirma wie folgt angegeben:

### 2. Ionisationskammer.

Anfängliche Schwierigkeiten bereitete der einwandfreie Betrieb einer chlorgefüllten Ionisationskammer. Von Auge kaum sichtbare Veränderungen an Isolationen oder auf den Elektroden, insbeson-

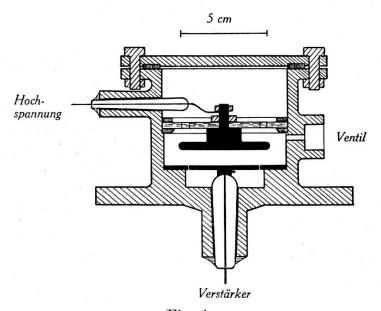


Fig. 1. Ionisationskammer im Schnitt.

dere die Bildung von Spuren flüssiger Chlorverbindungen können bei der Empfindlichkeit der Anordnung grosse Störungen verursachen. Die Konstruktion, die nach vielen Vorversuchen schliesslich gewählt wurde und sich gut bewährt hat, ist in Fig. 1 darge-

<sup>\*)</sup> Wir danken der Firma Ciba, Gesellschaft für chemische Industrie, in Basel für die freundliche Überlassung von Chlor.

stellt. Sie besteht in einem Schutzringkondensator, der in ein druckfestes Gehäuse eingebaut ist. Als Kammer- und Elektrodenmaterial erwies sich sorgfältig verchromtes Eisen als vorteilhaft. Die Hauptbedingung ist dabei, dass das Eisen sehr gut poliert wird und keine Poren aufweist und dass auch die Chromschicht möglichst kompakt und auf Hochglanz poliert ist. Trotzdem wurde das Chrom punktweise angegriffen unter Bildung feinster, grünlicher Tröpfchen, was allerdings jeweils erst nach mehrwöchigem Betrieb zu Störungen führte und eine Reinigung der Kammer notwendig

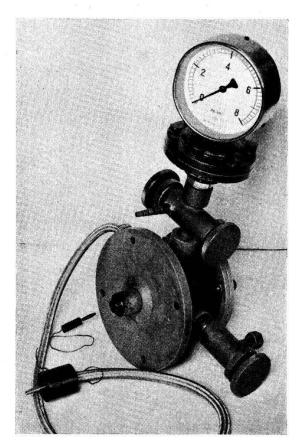


Fig. 1a. Ionisationskammer für Chlor.

machte. Als Isoliermaterialien konnten keine organischen Stoffe verwendet werden. Kunstharze, Pizein, Hartgummi und Paraffin werden in Chlor in kurzer Zeit leitend, ebenso Porzellan; es bewährten sich einzig Glas und Quarz mit ganz glatter Oberfläche. Deswegen wurden als Halterung der Hochspannungselektrode eine Glasplatte, für diejenige der Auffängerelektrode und für die elektrische Durchführung Glasschliffe mit eingeschmolzenem Durandraht verwendet. Die Glasplatte wird mit Hilfe eines Schraubenringes fixiert. Die Hochspannungselektrode ist an der Glasplatte festgeschraubt. Der Abstand der beiden Elektroden kann zur Berechnung der Kapazität

genau ausgemessen werden. Die Glasschliffe sind von innen eingesetzt, da sie einen Überdruck von mehreren Atmosphären aushalten müssen, und mit wenig Pizein eingekittet. So kann nur ein schmaler Streifen des Pizeins zwischen Glas und Metall vom Chlor angegriffen werden, während es in den mittleren und äusseren Partien des Schliffes geschützt ist. Der Deckel der Kammer sowie die Druckventile sind ausschliesslich mit Bleiringen gedichtet, die sich an den dem Chlor ausgesetzten Stellen nur mit einer harmlosen Schicht weissen Bleichlorids überziehen.

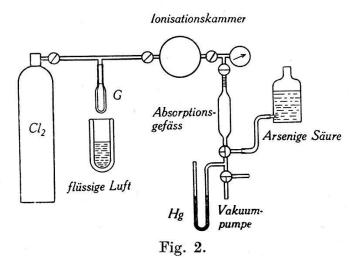
Zur Messung des Chlordrucks wurde ein Plattenmanometer gebraucht, das direkt an die Kammer angeschraubt war. Das Innere wurde verchromt, doch war es nicht möglich, dieses Schutzschicht überall genügend kompakt zu machen. Dadurch bildeten sich anfänglich grosse Verunreinigungen von Eisenchlorid, wobei so viel Chlor verbraucht wurde, dass der Druck in der Kammer fortwährend abnahm. Aus diesem Grunde wurde zwischen Ionisationskammer und Manometer ein Doppelventil eingefügt. Dieses gestattet einerseits, nach der Druckmessung das Manometer gegen die Kammer abzuschliessen und zu evakuieren, anderseits bei der Füllung einen Strom von Chlor durch die Kammer zu pressen. Zur Kontrolle des Druckes wurde die Verbindung mit dem gut evakuierten Manometer wieder hergestellt; aus dem sich einstellenden Druck und dem bekannten Volumenverhältnis von Kammer und Manometer kann der ursprüngliche Druck in der Kammer berechnet werden. Es zeigte sich, dass der Druck in der abgeschlossenen Kammer während mehreren Wochen praktisch konstant blieb, ein Zeichen dafür, dass sich keine wesentlichen chemischen Reaktionen mehr abspielten.

Die Hochspannung (bis 11000 Volt) wird durch ein abgeschirmtes Kabel zugeführt. Die Lötstelle zwischen Kabel und Durandraht befindet sich in der Achse eines an die Kammer angeschraubten Rohrstückes, welches zur Vermeidung von Überschlägen mit Pizein ausgefüllt ist. Im Innern der Kammer ist der Durandraht an die Hochspannungselektrode angeschraubt, da Lötstellen dem Chlor nicht standhalten.

# 3. Füllung der Ionisationskammer.

Bei der Füllung der Ionisationskammer ist zu berücksichtigen, dass sowohl die Kammer als auch das Gas möglichst trocken sein müssen, da Spuren von Feuchtigkeit dem Chlor eine viel grössere Reaktionsfähigkeit verleihen. Es erwies sich jedoch als überflüssig, das aus der Bombe kommende Chlor zu trocknen. Die Kammer wurde vor dem Füllen längere Zeit evakuiert. Das Durchblasen von Heissluft verbesserte das Resultat nicht. Eine Ausheizung der Kammer bei höherer Temperatur verbot sich mit Rücksicht auf die pizeinierten Glasschliffe. Dadurch, dass alle dem Chlor ausgesetzten Oberflächen möglichst glatt gemacht werden, wird auch eine eventuell anhaftende Wasserhaut verkleinert.

Für die vorliegende Arbeit ist es wichtig, den Gehalt des Füllgases an Stickstoff zu kennen. Stickstoff ist die einzige Beimengung, welche mit den verwendeten Neutronen Kernrekationen ausführt. Wie sich zeigen wird, fällt die Energietönung einer Chlorreaktion fast genau mit derjenigen einer Stickstoffreaktion zusammen, so dass zuerst eine Verunreinigung der Kammer mit Stickstoff vermutet wurde. Die Bestimmung des Fremdgasgehaltes des in der Ionisationskammer befindlichen Chlors bewies jedoch eindeutig, dass es sich um eine Kernumwandlung von Chlor handelt.



Einrichtung zur Füllung der Ionisationskammer mit Cl<sub>2</sub>.

Fig. 2 gibt eine schematische Darstellung der Füllanordnung. Im dickwandigen Glasgefäss G werden einige cm³ flüssiges Chlor ausgefroren, wodurch die in der Bombe enthaltenen öligen Verunreinigungen niedergeschlagen werden. Durch langsames Verdampfen wird die Ionisationskammer und das angeschlossene Absorptionsgefäss gründlich mit Chlor gespült und die Kammer schliesslich mit ca. 5 Atm. Cl<sub>2</sub> gefüllt. Im Absorptionsgefäss kann mit Hilfe von arseniger Säure als Absorptionsflüssigkeit¹6) der Gehalt des Chlores an Fremdgasen festgestellt werden; er betrug 0,6%. Dieser Wert ist nur unbedeutend höher als der von der Ciba angegebene (vgl. S. 101). Aus diesen beiden Angaben kann mit Sicherheit geschlossen werden, dass der Gehalt an Stickstoff in der Ionisationskammer nicht mehr als 0,2% ausmachte. Zur Kontrolle ist nach

der Ausführung mehrerer Messungen mit Neutronen der Inhalt der Ionisationskammer nochmals in analoger Weise auf Fremdgase geprüft worden. Dabei konnte das oben angeführte Ergebnis bestätigt werden.

## 4. Linearer Verstärker.

Der verwendete 5-stufige lineare Verstärker ist in einer Arbeit von Huber<sup>17</sup>) beschrieben worden. Ein Messinggehäuse, das direkt an die Ionisationskammer angeschraubt wird, enthält die erste Röhre, eine Triode RE 134. Diese wird mit 2 Volt Heiz- und 12 Volt Anodenspannung betrieben. Ihr Gitter ist frei und direkt mit der Auffängerelektrode der Ionisationskammer verbunden. Die Endstufe des Verstärkers betreibt einen Schleifenoszillographen, dessen Lichtzeigerausschläge auf einem Papierfilm registriert werden. Die Eichung des Verstärkers erfolgt dadurch, dass man durch Anlegen genau bekannter Spannungsstösse zwischen Hochspannungsplatte und Erde eine leicht berechenbare Influenzladung auf die Auffängerelektrode bringt und die entstehenden Ausschläge misst. Diese Eichungen werden für jeden Messfilm mehrmals ausgeführt, um Schwankungen in der Empfindlichkeit des Verstärkers bei der Auswertung berücksichtigen zu können. Während des Ausschaltens der Hochspannung vor der Ausführung der Eichung muss die Auffängerplatte geerdet werden, wodurch man eine unter Umständen unerwünschte negative Aufladung dieser Elektrode vermeidet.

# 5. Neutronenquelle.

Auch die zur Erzeugung der Neutronen verwendete Apparatur ist verschiedentlich beschrieben worden<sup>17</sup>)<sup>18</sup>).

Ein Kanalstrahl von schwerem Wasserstoff, der eine Beschleunigungsspannung von 130 kV durchläuft und eine Stromstärke von maximal 60  $\mu$ A besitzt, trifft auf eine Schicht von schwerem Eis. Hierbei erfolgt u. a. der Neutronen liefernde Prozess H²(H², n) He³. Aus neuern Messungen¹9) über die Energietönung dieser Reaktion (3,31 MeV) berechnet man die maximale Energie der Neutronen zu 2,87 MeV. Bei 50  $\mu$ A Deutonenstrom beträgt die Gesamtzahl der pro sec erzeugten Neutronen ungefähr 2,5 · 107.

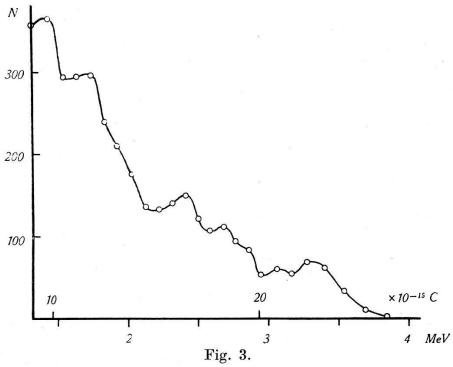
### C. Messungen und Ergebnisse.

Ionisationskammer und linearer Verstärker wurden mehrmals geprüft durch Messung der Energietönung der (n,p)-Reaktion von Stickstoff mit langsamen Neutronen. Die Übereinstimmung unserer Resultate mit dem gut bekannten Wert<sup>20</sup>)  $Q = 0.55 \pm 0.03$  MeV war sehr zufriedenstellend.

# 1. Messungen mit schnellen Neutronen\*).

Die Ionisationskammer wurde mit 3—5 Atm. Chlor gefüllt. Ihr minimaler Abstand von der Zertrümmerungssubstanz betrug 22,5 cm. Die Neutronen traten dann unter dem Winkel  $\Theta=0^{\circ}\pm 5,5^{\circ}$  gegen die Richtung des Deutonenstrahles in das Zählvolumen der Kammer ein. Unter diesen Umständen hatte die Neutronenenergie, wie schon erwähnt, den Wert 2,87 MeV. Die durch den genannten Winkelbereich bewirkte Variation der Neutronenenergie macht weniger als 0,1% aus. Ebenso sind kleine Schwankungen der Beschleunigungsspannung zu vernachlässigen.

Das in der Kammer zur Sammlung der entstehenden Ionen angelegte Feld betrug 6200—9100 V/cm. Bei einer Änderung der Feldstärke in diesem Bereich war keine Verschiebung der Ausschlagsstatistik festzustellen, was beweist, dass Sättigung vorhanden war.



Messung mit schnellen Neutronen.

Zahl der Reaktionen in Funktion der entstehenden Ladung Q bzw. der Energie:  $E=Q/e\cdot 23,5~{\rm eV}.$ 

Die Stelle  $E=2,87~\mathrm{MeV}$  entspricht der Energietönung 0.

Fig. 3 zeigt als Beispiel das Ergebnis einer Messung von 50 Minuten Dauer. Die registrierten Ausschläge wurden in Intervalle von 1 mm Breite eingeteilt, beginnend mit einer minimalen Länge von

<sup>\*)</sup> Diese unveröffentlichten Resultate wurden uns von J. Rossel und A. Süsstrunk vom hiesigen Institut freundlicherweise zur Verfügung gestellt.

6 mm. Die Abszisse der Messpunkte gibt die Ladung, die mit Hilfe der Eichkurve der mittleren Ausschlagslänge in einem Intervall entspricht, die Ordinate die Zahl der Ausschläge, welche in dieses Intervall fallen. Ausser der gemessenen Ladung ist auch die entsprechende Energie angegeben, die unter Verwendung des Wertes  $J_{\rm Cl}=23.5~{\rm eV/Ionenpaar}$  für die Ionisationsarbeit in Chlor berechnet wurde, wie er im zweiten Teil dieser Arbeit bestimmt wird (vgl. S. 125). Die Kurve gibt nur den obern Teil des Energiespektrums wieder, doch zeigt die Ausschlagsverteilung auch im gesondert untersuchten Gebiet kleiner Energien denselben auffallenden Charakter: eine mit zunehmender Energie im wesentlichen abnehmende Häufigkeit der Ausschläge, wobei dennoch eine grössere Anzahl (mindestens 12) mehr oder weniger ausgeprägter Maxima auftreten. Diese Maxima waren bei jeder der zahlreichen Messungen gut reproduzierbar und sind daher als Protonen- und α-Teilchen-Gruppen anzusprechen. Da, wie früher ausgeführt, nur 3 Reaktionen vor sich gehen können, müssen die meisten Maxima Umwandlungen zugeschrieben werden, die nicht in den Grundzustand, sondern — und zwar vornehmlich — in angeregte Zustände eines oder mehrerer der entsprechenden Kerne führen. Eine Zuordnung der verschiedenen Gruppen zu bestimmten Kernreaktionen ist angesichts der Kompliziertheit des Energiespektrums undurchführbar. Es kann einzig vermutet werden, dass das oberste Maximum bei 3,35 MeV von einer Protonengruppe herrührt, da diese dem Randeffekt stark unterliegt, wodurch der flache Abfall dieses Maximums verständlich würde. Diese Vermutung wird auch durch die Messungen mit langsamen Neutronen wahrscheinlich gemacht.

In allen Messungen deutlich erkennbar ist die Existenz einer maximalen Energie. Nimmt man dafür den extrapolierten Wert des obersten Maximums, so erhält man  $E_{\rm extr.}=3.73\pm0.30~{\rm MeV}.$  In diesem Fehler sind die maximalen Fehler in der extrapolierten Ladung und in der Ionisationsarbeit enthalten. Die zu dem extrapolierten Wert gehörende Energietönung findet man durch Subtraktion der Neutronenenergie:  $Q_{\rm extr.}=0.86\pm0.30~{\rm MeV}.$  Die obere Schranke für die Energietönung sämtlicher  $(n,\alpha)$ - und (n,p)-Prozesse von Chlor beträgt somit

$$Q_{\text{max}} = 1,16 \text{ MeV}.$$

Dieses Resultat wird uns eine obere Grenze für die Masse von Cl<sup>35</sup> liefern (vgl. S. 116).

## 2. Messungen mit langsamen Neutronen.

Die Versuche mit schnellen Neutronen haben gezeigt, dass eine, eventuell mehrere Chlorreaktionen exotherm verlaufen. Die Bestimmung der Energietönung dieser Prozesse kann mit wesentlich grösserer absoluter Genauigkeit erfolgen, wenn die Umwandlung mit langsamen Neutronen ausgelöst wird. Deswegen wurde in längern Messungen die Wirkung langsamer Neutronen auf Chlor untersucht.

Fig. 4 zeigt die Anordnung der Ionisationskammer bei diesen Messungen. Eine 20 cm dicke Paraffinschicht bewirkt die Verlang-

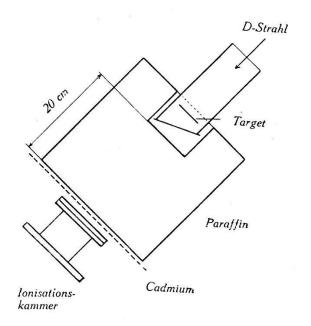
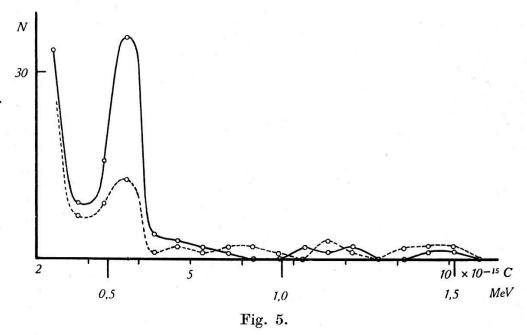


Fig. 4.
Anordnung der Ionisationskammer.

samung der d-d-Neutronen. Um die spezifische Wirkung der thermischen Neutronen zu beobachten, kann zwischen Paraffinblock und Ionisationskammer ein Cadmiumblech (1½ mm) eingeschoben werden, welches die thermischen Neutronen absorbiert. Die Differenz der Messungen ohne und mit Cd-Absorber gibt den Anteil an den Kernreaktionen, der vornehmlich den thermischen Neutronen zugeschrieben werden muss.

Fig. 5 zeigt das Resultat einer Messung bei einer mittleren Empfindlichkeit des Verstärkers. Die ausgezogene Kurve wurde ohne, die gestrichelte mit Cd-Absorber erhalten. Es zeigte sich sofort, dass nur ein einziges scharfes Maximum auftritt, welches bei ungefähr 3,6 · 10<sup>-15</sup> C liegt. Absorbiert man die thermischen Neutronen, so wird das Maximum stark verkleinert. Dieses kleine Maximum rührt z. T. noch von gestreuten Neutronen her, da die

Kammer nicht allseitig abgeschirmt war. Die Reaktion wird also in hohem Masse von thermischen Neutronen ausgelöst. Es werden aber auch Ausschläge registriert, die von der Wirkung schneller Neutronen herrühren müssen, da sie in beiden Kurven innerhalb der statistischen Schwankungen gleich häufig auftreten. So ist der steile Abfall bei 2,4 · 10<sup>-15</sup> C ausser durch den Untergrund besonders durch Rückstosskerne bedingt, deren maximale Energie man zu 0,31 MeV berechnet. Ferner finden sich über den ganzen Messbereich verteilte Ausschläge, die auf Kernreaktionen mit schnellen Neutronen zurückzuführen sind, und die vor allem oberhalb des



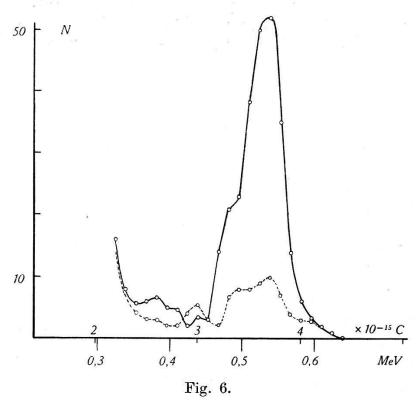
Messung mit langsamen Neutronen.

----- mit Cadmium-Absorber. — ohne Cadmium-Absorber.

Maximums deutlich in Erscheinung treten. Dass die beiden genannten Anteile an der Ausschlagstatistik von schnellen Neutronen verursacht werden, zeigte sich auch dadurch, dass sie in den ersten Messungen, bei welchen eine nur 12 cm dicke Paraffinschicht gebraucht wurde, bedeutend intensiver waren. Durch die Vergrösserung der Paraffinschicht auf 20 cm konnte zwar das Verhältnis der Anzahl der langsamen zu derjenigen der schnellen Neutronen erhöht, das Maximum also deutlicher hervorgehoben werden; dafür sank natürlich auch die absolute Intensität der langsamen Neutronen, und zwar etwa um einen Faktor 3. Es konnten dann pro Minute im Mittel nur 2 bis 5 dem Maximum zugehörige Ausschläge registriert werden, je nach Chlordruck und Deutonenstromstärke.

Um die Lage des Maximums auf der Energieskala genauer

bestimmen zu können, wurden Messungen mit grosser Empfindlichkeit des Verstärkers ausgeführt. Das Resultat eines Filmes ist in Fig. 6 aufgezeichnet. Es wurde dabei je 80 Minuten mit und ohne Cd-Absorber gemessen. Die Wirkung der thermischen Neutronen tritt sehr deutlich hervor. Fig. 7 zeigt Ausschnitte aus dem Registrierfilm. Das Maximum liegt hier etwas höher, bei einer Ladung von 3,7 · 10<sup>-15</sup> C, entsprechend einer Energietönung von 0,54 MeV.



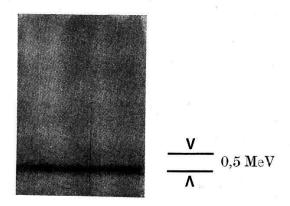
Messung mit langsamen Neutronen.

----- mit Cadmium-Absorber. —— ohne Cadmium-Absorber.

Zur Sicherstellung der Energiemessung müssen auch der Einfluss des Randeffektes und der Rekombination der Ionen untersucht werden. Der erste kann vernachlässigt werden, da α-Teilchen und Protonen einer Energie von 0,52 MeV in Chlor von 3 Atm. eine Reichweite von nur 0,7 bzw. 1,6 mm besitzen. Die Rekombination wurde dadurch untersucht, dass die Lage des Maximums in Funktion der elektrischen Feldstärke und des Gasdruckes eingehend gemessen wurde. Insbesondere wurde eine Sättigungskurve aufgenommen bei variabler Spannung und dem konstanten Druck von 4 Atm. Sie ist in Fig. 8 dargestellt. Die meisten Punkte entsprechen einer Messdauer von 20 Minuten, einzig der Punkt bei 9000 Volt/cm wurde durch längere Messungen gewonnen und ist deshalb der am besten gesicherte. Man sieht, dass ungefähr von

6000 Volt/cm an die Sättigung erreicht ist, was mit dem früher gefundenen Resultat (vgl. S. 106) übereinstimmt. Auch eine Erniedrigung des Druckes auf 1,5 Atm. bei 9300 Volt/cm ergab keine Erhöhung der gemessenen Ladung mehr.

Zur endgültigen Energiebestimmung wurden 6 Messungen verwendet, die unter folgenden Bedingungen erhalten wurden:



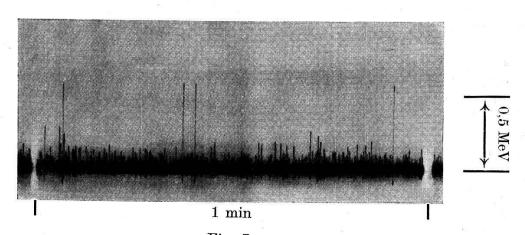


Fig. 7.

Ausschnitte aus dem Registrierfilm.

Messung mit langsamen Neutronen.

Druck 2,6 bis 4,0 Atm., Feldstärke: 9100 bis 11600 Volt/cm. Eine Fälschung der Energiemessung durch Wiedervereinigung von Ionen ist daher ausgeschlossen. Die sechs Messungen ergaben gut übereinstimmende Werte für die Ladung; sie liegen alle im Bereich von 3,45 · 10<sup>-15</sup> bis 3,70 · 10<sup>-15</sup> C. Die Wirkung der schnellen Neutronen wurde nicht subtrahiert. In Fig. 9 ist die Summenkurve dieser Messungen dargestellt. Das Maximum liegt bei 3,55 · 10<sup>-15</sup> C. Die statistisch bedingten Unregelmässigkeiten der einzelnen Kurven heben sich bei der Summenbildung auf. Aus den 6 Teilmessungen wurde der mittlere Fehler berechnet; er beträgt ± 0,10 · 10<sup>-15</sup> C. Mit dem im zweiten Teil (vgl. S. 125) bestimmten Wert für die

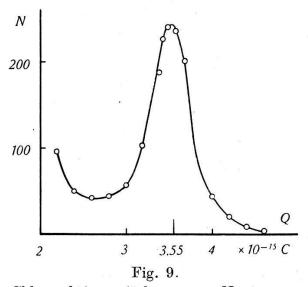
Ionisationsarbeit von  $23.5 \pm 1.2 \,\mathrm{eV}$  erhält man für die Energietönung der vorliegenden Reaktion:

$$Q = 0.52 \pm 0.04 \, \mathrm{MeV}.$$
 $\frac{10^{-15} \, \mathrm{C}}{2}$ 
 $\frac{Volt}{cm}$ 

Fig. 8.

Sättigungskurve in Chlor.

Die Grösse dieser Reaktionsenergie fällt sehr nahe zu derjenigen der Stickstoffreaktion N<sup>14</sup> (n,p) C<sup>14</sup>, die 0,55  $\pm$  0,03 MeV beträgt. Diese Tatsache erklärt folgendes Ergebnis: Nach einer Messung mit



Chlorreaktion mit langsamen Neutronen.

Summe von 6 Messungen, Maximum bei  $3.55 \cdot 10^{-15}$  C, entspricht einer Energietönung von 0.52 MeV.

2,5 Atm. Chlor wurden noch 0,5 Atm. Stickstoff in die Ionisationskammer eingefüllt. Eine Messung von gleicher Dauer mit dem genannten Gemisch ergab dann nicht das Auftreten von zwei getrennten Maxima, sondern es erhöhte sich lediglich die Fläche unter dem einzigen Maximum, d. h. die Zahl der Reaktionen, um einen Faktor 2, ohne genau feststellbare Formveränderung der Kurve. Dies bedeutet, dass der Wirkungsquerschnitt dieser Chlorreaktion etwa  $^{1}/_{5}$  desjenigen der Stickstoffreaktion beträgt. Aus einer grössern Anzahl von Chlormessungen und drei Messungen mit Stickstoff wurde die Zahl der pro  $\mu$ A Deutonenstrom, pro Atm. Gasdruck und pro Minute registrierten Kernreaktionen bestimmt. Es ergab sich:

$$egin{align} arrho_{Cl} &= rac{R_{Cl}}{i \cdot t \cdot p_{Cl}} = 0.025 \ (\mu ext{A min Atm.})^{-1} \ & \ arrho_{N} &= rac{R_{N}}{i \cdot t \cdot p_{N}} = 0.13 \ (\mu ext{A min Atm.})^{-1} \ & \ \ \end{array}$$

Dabei bedeuten:

 $R_{Cl}$ ,  $R_N$  = Zahl der zu dem Chlor- bzw. Stickstoff-Maximum gehörenden Reaktionen.

 $p_{Cl}, p_N =$ Chlor- bzw. Stickstoff-Druck in Atm. in der Ionisationskammer.

 $i = \text{mittlerer Deutonenstrom in } \mu \text{A.}$ 

t = Messdauer in Minuten.

Daraus berechnet man den relativen Wirkungsquerschnitt der Chlorreaktion zur Reaktion  $N^{14}(n,p)$   $C^{14}$ :

$$rac{\sigma_{Cl}}{\sigma_{N}} = rac{arrho_{Cl}}{arrho_{N}} = 0.19 \pm 0.04$$

Andere Protonen- oder α-Gruppen, die wegen einer sehr kleinen Intensität der Beobachtung entgangen sein könnten, sind natürlich nicht völlig auszuschliessen. Aus unsern Messungen geht jedoch hervor, dass eine Reaktion mit einer Energietönung von mehr als 0,6 MeV einen Wirkungsquerschnitt haben müsste, der mindestens 20 mal kleiner wäre als der dem grossen Maximum entsprechende.

Zwar ist damit die Existenz einer exothermen Chlorreaktion sichergestellt, doch muss noch entschieden werden, ob es sich dabei um einen  $(n,\alpha)$ - oder einen (n,p)-Prozess handelt. Eine Unterscheidung zwischen  $\alpha$ - und p-Gruppen kann oft dadurch vorgenommen werden, dass man die Formveränderungen untersucht, denen die Maxima bei abnehmendem Druck in der Ionisationskammer infolge des Randeffektes unterliegen. Da Protonen eine bedeutend grössere Reichweite besitzen als  $\alpha$ -Teilchen gleicher Energie, so bewirkt der Randeffekt mit abnehmendem Druck zuerst eine Deformation der

Protonen-Maxima. Dieses Verfahren eignet sich im vorliegenden Fall nicht, da erstens wegen der kurzen Reichweite der Teilchen der Druck oder das Zählvolumen so klein gemacht werden müsste, dass die Zahl der Reaktionen viel zu gering würde, und zweitens die Vergleichsmöglichkeit zwischen zwei verschiedenen Maxima fehlt, so dass eine Entscheidung sehr unsicher würde. Bei der zur Verfügung stehenden Neutronenintensität ist auch die Untersuchung der Reaktion mit Hilfe der Wilsonkammer undurchführbar. Da aber mit langsamen Neutronen in der Messung mit der Ionisationskammer merklich nur eine einzige Reaktion auftritt, kann die Art dieses Prozesses durch Aktivitätsmessungen entschieden werden. In der Tat hat Kamen<sup>13</sup>) in der schon früher zitierten Arbeit festgestellt, dass der Prozess  $Cl^{35}(n,p)$   $S^{35}$  stark auf thermische Neutronen anspricht. Er hat zwei Gefässe mit CCl<sub>4</sub>, wovon eines ganz mit Cadmiumblech umgeben war, in Paraffin mit den Neutronen eines Cyclotrons bestrahlt und die entstehende Aktivität von S<sup>35</sup> gemessen. Das abgeschirmte CCl<sub>4</sub> zeigte eine 6 mal schwächere Aktivität als das unabgeschirmte. Gestützt auf dieses Ergebnis kann man den mit der Ionisationskammer gemessenen Prozess als die Reaktion  $Cl^{35}(n,p)S^{35}$  identifizieren. Proton und Schwefelkern bekommen also eine Gesamtenergie von 0,52 MeV.

## 3. Aktivitätsmessungen.

Eigene Aktivitätsmessungen sind in Übereinstimmung mit den Resultaten von Kamen. Zwei Zylinder aus gepresstem Kochsalz wurden in einem Paraffinblock symmetrisch zu einer Ra-Be-Neutronenquelle (50 mg Ra) angeordnet, wobei die minimale Schichtdicke an Paraffin zwischen Quelle und Kochsalz 5 cm betrug. Der eine Zylinder war ganz von Cadmium umgeben, so dass er nur der Wirkung schneller Neutronen unterlag. Nach einer Bestrahlungsdauer von 3<sup>1</sup>/<sub>2</sub> Monaten wurde die Aktivität des Kochsalzes gemessen. Messungen mit einem Al-Zählrohr von <sup>1</sup>/<sub>10</sub> mm Wandstärke zeigten nach dem Abklingen der Perioden von Cl<sup>38</sup> (37,5 min) und Na<sup>24</sup> (14,8 h) eine Periode von 14 Tagen, die vom Phosphorisotop P<sup>32</sup> herrührte. Diese Aktivität war bei den beiden Zylindern gleich stark, was beweist, dass die Reaktion  $Cl^{35}(n,\alpha)P^{32}$  mit langsamen Neutronen nicht merklich auftritt. Um die sehr weiche β-Strahlung von S<sup>35</sup> nachzuweisen, wurde der Phosphor und der Schwefel aus dem Kochsalz getrennt ausgefällt\*) und ein sog.

<sup>\*)</sup> Herrn Dr. Jacobi danken wir für die Ausführung der chemischen Trennung.

"screen wall counter" benutzt. Dieses Zählrohr besitzt als Kathode ein Messingnetz, durch dessen Maschen die  $\beta$ -Teilchen ungehindert in das wirksame Volumen eintreten können. Es wird mitsamt dem zu untersuchenden Präparat in ein weiteres Rohr eingeschlossen, welches mit dem Alkohol-Luft-Gemisch gefüllt wird. Mit diesem Gitterzählrohr zeigten nun die aus dem NaCl gewonnenen Schwefelpräparate eine deutliche langperiodige Aktivität, die von S35 herrühren muss, während eine solche mit Hilfe des erwähnten Al-Zählrohrs wegen der geringen Energie der β-Strahlung nicht nachzuweisen war. In der Tat werden 100 kV-Elektronen durch <sup>1</sup>/<sub>10</sub> mm Al völlig absorbiert. Im Gegensatz zu den Phosphorpräparaten, die beide gleich intensiv waren, besass der aus dem nicht mit Cd abgeschirmten Kochsalz stammende Schwefelniederschlag eine etwa 2½ mal grössere Aktivität als der aus dem abgeschirmten Kochsalz stammende. Dieser Unterschied ist auf die Wirkung der thermischen Neutronen zurückzuführen. Dass die Differenz nicht so deutlich in Erscheinung tritt wie bei den Messungen mit der Ionisationskammer, ist durch die Tatsache zu erklären, dass infolge der kleinern Paraffinschicht und der grössern Neutronenenergie die Zahl der schnellen Neutronen im Kochsalz relativ gross ist. Die Verstärkung der Aktivität von S<sup>35</sup> durch langsame Neutronen könnte somit durch die Verwendung einer dickeren Paraffinschicht gesteigert werden, doch würde das gleichzeitig eine bedeutend intensivere Neutronenquelle erfordern. Der Versuch wurde daher nicht mehr wiederholt.

#### D. Diskussion.

1. Der Prozess  $Cl^{35}(n,p)S^{35}$ .

Als Energietönung dieses Prozesses erwartet man auf Grund des  $\beta$ -Spektrums von S<sup>35</sup>:

$$Q=0{,}650\pm0{,}020~\mathrm{MeV}.$$

In der Ionisationskammer wurde aber gemessen:

$$Q=0.52\pm0.04~\mathrm{MeV}.$$

Die Diskrepanz zwischen diesen Werten, welche die Fehlergrenzen übersteigt, rechtfertigt folgende Annahme: Bei der Reaktion entsteht der Schwefelkern vorwiegend in einem angeregten Zustand, der  $0.13 \pm 0.06$  MeV oberhalb des Grundzustandes liegt. Von diesem Niveau aus geht er unter Emission eines  $\gamma$ -Quants mit einer Energie von  $0.13 \pm 0.06$  MeV in den Grundzustand über. In der Ionisationskammer wird nicht die volle Energietönung des Pro-

zesses gemessen, da das beobachtete Maximum der Entstehung eines angeregten Kernes entspricht, während das Maximum, das von der Bildung des unangeregten Kernes herrühren würde, infolge seiner Kleinheit der Beobachtung entgeht. Eine Abschätzung der  $\gamma$ -Strahlintensität zeigt, dass der direkte Nachweis der  $\gamma$ -Strahlung des angeregten S³⁵ sehr schwierig wäre.

Überraschend ist die Tatsache, dass der Wirkungsquerschnitt der Reaktion  $Cl^{35}(n,p)$   $S^{35}$  nur 4mal kleiner ist als jener der analogen Reaktion  $N^{14}(n,p)$   $C^{14}$ . Wäre das Verhältnis  $\frac{\sigma_N}{\sigma_{Cl}}$  der beiden Wirkungsquerschnitte im wesentlichen durch die Durchlässigkeit der Potentialschwellen bedingt, so müsste es ungefähr den Wert 3000 haben. Berechnet man nämlich für Stickstoff und Chlor und die zugehörigen Protonenenergien die Höhe des Gamow-Berges B und den Gamow-Faktor  $G^{24}$ ), so findet man die Werte:

$$egin{aligned} B_N &= 2{,}37~{
m MeV}, & G_N &= 12{,}7\cdot 10^{-2}, \ B_{Cl} &= 4{,}56~{
m MeV}, & G_{Cl} &= 4{,}1\cdot 10^{-5}, \end{aligned} \qquad rac{G_N}{G_{Cl}} = 3000.$$

Die (n,p)-Reaktionen verlaufen im allgemeinen endotherm. Die Prozesse N<sup>14</sup>(n,p) C<sup>14</sup> und Cl<sup>35</sup>(n,p) S<sup>35</sup> sind die einzigen, welche auch mit langsamen Neutronen beobachtet worden sind. Nur wenige andere wären energetisch noch möglich, z. B. B<sup>10</sup>(n,p) Be<sup>10</sup> und Zn<sup>64</sup>(n,p) Cu<sup>64</sup>.

# 2. Die Massen von Cl<sup>35</sup>.

Die Protonengruppe der Reaktion  $Cl^{35}(n,p)S^{35}$  tritt natürlich auch mit schnellen Neutronen auf. In Fig. 3 ist ihr wohl das oberste, flache Maximum zuzuordnen. Bei Berücksichtigung der Messfehler kann man jedoch nicht entscheiden, ob darin auch die der Entstehung des Grundzustandes entsprechende Gruppe und eventuell von andern Chlorreaktionen herrührende kleine Maxima enthalten sind. Wie früher angegeben (S. 107), liegen jedoch die Energietönungen sämtlicher Prozesse sicher unterhalb 1,16 MeV, entsprechend  $1,25 \cdot 10^{-3}$  Masseinheiten\*). Aus der Reaktionsgleichung (2) (S. 99) folgt daher für die Chlormasse:

$$\begin{array}{l} {\rm Cl^{35}} < {\rm P^{32}} + \alpha - n + 1{,}25 \cdot 10^{-3} \\ {\rm Cl^{35}} < 31{,}98437 + 4{,}00386 - 1{,}00895 + 0{,}00125 = 34{,}98053 \\ {\rm Cl^{35}} < 34{,}98053 \end{array}$$

<sup>\*)</sup> Die einzige Veröffentlichung, die sich mit der Untersuchung der Chlorreaktionen in der Ionisationskammer befasst, stammt von Nemilov<sup>25</sup>). Da uns die Resultate zu wenig ausführlich bekannt sind, müssen wir auf einen Vergleich mit unsern Ergebnissen verzichten.

Vergleicht man diese obere Schranke für die Masse von Cl³5 mit den in Abschnitt I/A angegebenen Werten:

34,98107 POLLARD<sup>8</sup>)
34,9807 Isotopenbericht 1941<sup>7</sup>)
34,97884 OKUDA u. a.<sup>1</sup>)<sup>3</sup>),

so erkennt man, dass einzig der letztgenannte Wert, der von Okuda und Mitarbeitern massenspektrographisch bestimmt wurde, die Schranke nicht übersteigt. Nach unsern Messungen wäre also dieser Massenwert zu bevorzugen.

Unter Annahme innerer Übereinstimmung der japanischen Messungen ist an Stelle des kernphysikalisch bestimmten Wertes von Cl<sup>37</sup>: 36,97829 von Pollard auch eher der von Okuda u. a. gewonnene Wert Cl<sup>37</sup>: 36,97770 als richtig anzusehen.

#### ZWEITER TEIL.

## Bestimmung der Ionisationsarbeit in Chlor.

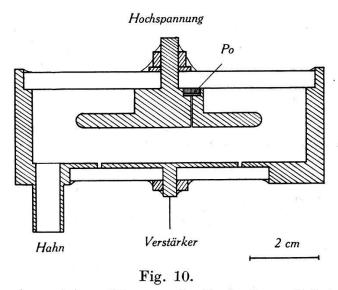
Da die mittlere Ionisationsarbeit in einem Gas für Protonen,  $\alpha$ -Teilchen und Rückstosskerne denselben Wert hat, genügt es, die Bestimmung mit  $\alpha$ -Teilchen auszuführen.

Das Prinzip der Messung ist folgendes: Zwischen die, einen Plattenkondensator bildenden Elektroden einer speziellen Ionisationskammer werden α-Teilchen geschossen. Es wird dann die Ionenmenge verglichen, die ein einzelnes α-Teilchen erzeugt, wenn die Kammer einmal mit Stickstoff und einmal mit Chlor gefüllt ist und das Verhältnis zwischen den α-Teilchen-Energien in beiden Fällen bekannt ist. Damit erhält man eine Vergleichsmessung mit dem gut bekannten Wert der Ionisationsarbeit in Stickstoff, der 35,0 eV pro Ionenpaar beträgt. Die Methode wurde an Sauerstoff und Argon geprüft; ferner wurde auch eine Absolutmessung an Stickstoff ausgeführt.

### A. Apparatur.

Fig. 10 zeigt einen Querschnitt durch die Ionisationskammer, die für Atmosphären- oder Unterdruck berechnet ist. Das Gehäuse besteht aus Messing, die Elektroden aus Eisen. Beides ist sehr gut verchromt und poliert. Für die isolierenden Deckplatten wurde Glas verwendet, als Dichtungsmaterial Pizein. Ein Gehäuse mit der ersten Stufe des linearen Verstärkers wurde wieder direkt an

der Ionisationskammer befestigt (vgl. S. 105). Als α-Strahlenquelle diente Polonium, das auf einem kleinen Stück Silberfolie niedergeschlagen war. In den ersten Versuchen wurden die α-Teilchen von der Seite zwischen die Elektroden hineingeschossen. Wegen einer gewissen Unsicherheit in der seitlichen Begrenzung des Zählvolumens erwies es sich als vorteilhafter, die α-Teilchen durch einen dünnen Kanal aus der Hochspannungsplatte in den Zählraum gelangen zu lassen. Dieser Kanal, der eine Länge von 9 mm und einen Durchmesser von 0,5 mm besitzt, endet in einer kleinen Vertiefung auf der Rückseite der Hochspannungsplatte, gegen welche er durch eine Glimmer- oder Cellophanfolie von ca. 2 cm



Ionisationskammer zur Messung der Ionisationsarbeit in Chlor.

Luftäquivalent abgeschlossen ist. Auf dieser Folie liegt noch eine Blende und darüber das Poloniumpräparat. Die Blende ist so bemessen, dass pro Minute ca. 80  $\alpha$ -Teilchen in das Zählvolumen eintreten. Die Oberseite der Vertiefung wurde mit Apiezon verschlossen. Der Abstand zwischen den Elektroden betrug 10,9 mm. Der durch die geometrischen Dimensionen von Blende und Kanal bedingte maximale Unterschied in den Reichweiten der einzelnen  $\alpha$ -Teilchen macht nur etwa 0,1% aus. Ein starkes elektrisches Feld von 2000—5000 Volt/cm sorgte dafür, dass alle von den  $\alpha$ -Teilchen erzeugten Ionen gesammelt wurden.

### B. Messungen.

# 1. Prüfung der Methode mit $N_2$ , $O_2$ und A.

Zuerst wurde eine Messung in Stickstoff ausgeführt. Bei einem Druck von 727 mm  $\text{HgN}_2$  endeten die Reichweiten aller  $\alpha$ -Teilchen

im Zählvolumen. Das Resultat der Messung ist in Fig. 11 dargestellt (Kurve  $N_2$ ). Es ist wieder die Zahl der Ausschläge pro mm-Intervall in Funktion der zugehörigen Ladung aufgetragen. Die Kurve zeigt ein scharfes Maximum bei  $7.35 \cdot 10^{-15}$  C, entsprechend einer am häufigsten auftretenden Reichweite. Die Breite der Kurve ist bedingt durch die infolge der Bremsung der  $\alpha$ -Teilchen im Glimmer beträchtlich vergrösserten Reichweiteschwankung, ferner durch den Störpegel des Verstärkers.

Bei bekannter Energie der eintretenden α-Teilchen kann aus der Ladung der mittlere Energieaufwand pro Ionenpaar bestimmt werden. Die im Zählvolumen wirksame Energie wurde mit Hilfe

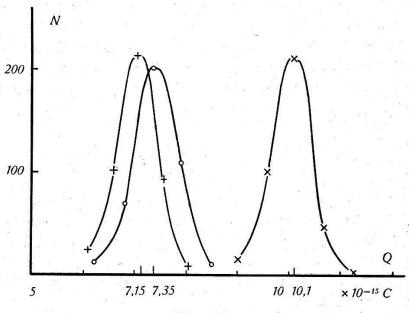


Fig. 11.

Bestimmung der Ionisationsarbeit in Sauerstoff und Argon mit Hilfe der Eichmessung in Stickstoff.

$$+ O_2$$
,  $o N_2$ ,  $\times A$ 

der Energie-Reichweitebeziehung von Bethe<sup>21</sup>) aus der Restreichweite ermittelt, welche die  $\alpha$ -Teilchen nach Durchsetzen der Glimmerfolie noch besassen. Diese (extrapolierte) Reichweite wurde mit einem Spitzenzähler gemessen. Mit dem extrapolierten Wert der Ladung berechnete man für die Ionisationsarbeit in Stickstoff den Wert  $J_N=34\,\mathrm{eV}$ . Die genügende Übereinstimmung mit dem genauen Wert (35,0 eV) erwies das gute Funktionieren der Versuchseinrichtung. Um aber die Ungenauigkeiten in den Reichweitebestimmungen zu vermeiden, ging man in den folgenden Versuchen umgekehrt vor: Mit dem als Grundlage angenommenen Wert

 $J_N = 35,0 \text{ eV}$  wurde aus der gemessenen Ladung  $Q_N$  die Energie der  $\alpha$ -Teilchen berechnet:

$$E_{\text{eff}_{N}} = \frac{Q_{N}}{e} \cdot J_{N} = \frac{7,35 \cdot 10^{-15}}{1,6 \cdot 10^{-19}} \cdot 35,0 = 1,61 \text{ MeV}$$

$$(e = \text{Elektronenladung})$$
(1)

Auf diese Weise erhält man die im Zählvolumen wirksame Energie  $E_{\rm eff}$ . Sie ist nun keine Konstante, sondern von Art und Druck des Gases abhängig, da schon im Kanal die Bremsung der  $\alpha$ -Teilchen in dem betreffenden Gas erfolgt.

Es soll nun mit Hilfe des Messergebnisses in Stickstoff die wirksame Energie in einem andern Gas berechnet werden. Es sei  $R_0$  die (unbekannte) Reichweite der  $\alpha$ -Teilchen in cm nach dem Austritt aus der Glimmerfolie in Luft von 760 mm Hg und 15° C. Dann ist die für die Messung wirksame Reichweite im Zählvolumen, wenn die Kammer mit einem Gas (Index 1) gefüllt ist, aber auch ausgedrückt in cm Luftäquivalent:

$$R_{\mathrm{eff_1}} = R_{\mathbf{0}} - d \cdot \frac{p_{\mathbf{1}}}{p_{\mathbf{0}}} \cdot \frac{T_{\mathbf{0}}}{T_{\mathbf{1}}} \cdot s_{\mathbf{1}} \tag{2}$$

In dieser Gleichung bedeutet d die Länge des Kanals in cm;  $p_1$ ,  $T_1$ ,  $s_1$  sind Druck in mm Hg, absolute Temperatur und Bremsvermögen (relativ zu Luft) des Gases,  $p_0 = 760$  mm Hg,  $T_0 = 288^{\circ}$  K, die den Energie-Reichweitekurven von Bethe zugrundeliegenden Zustandsgrössen. Schreibt man dieselbe Gleichung noch für ein zweites Gas (Index 2) auf

$$R_{ ext{eff}_2} = R_0 - d \cdot \frac{p_2}{p_0} \cdot \frac{T_0}{T_2} \cdot s_2$$

so kann  $R_0$  eliminiert werden:

$$R_{\mathrm{eff_2}} = R_{\mathrm{eff_1}} - \frac{d \cdot T_0}{p_0} \cdot \left( \frac{p_1 \cdot s_1}{T_1} - \frac{p_2 \cdot s_2}{T_2} \right) \tag{3}$$

Diese Gleichung gestattet, bei bekannten  $p_i$ ,  $T_i$  und  $s_i$  aus einer experimentell bestimmten wirksamen Reichweite in einem ersten Gas die wirksame Reichweite in einem zweiten Gas zu berechnen.

Gas 1 sei Stickstoff; dann kann nach Gleichung (1) aus der gemessenen Ladung die wirksame Energie berechnet werden.

$$E_{\mathrm{eff}_1} = \frac{Q_1}{e} \cdot J_1 = 1,61 \; \mathrm{MeV}$$

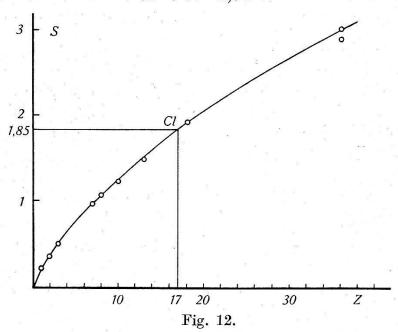
Mit diesem Wert folgt aus der Energie-Reichweite-Kurve eine wirksame Reichweite in Stickstoff  $R_{\rm eff_1} = 0,845$  cm. Mit Hilfe von Gleichung (3) erhält man nun die wirksame Reichweite und daraus wieder die wirksame Energie für ein beliebiges anderes Gas 2. Anderseits misst man die in Gas 2 erzeugte Ladung  $Q_2$  und kann so die gesuchte Ionisationsarbeit  $J_2$  von Gas 2 berechnen:

$$J_{\mathbf{2}} = \frac{E_{\mathbf{eff_2}} \cdot e}{Q_{\mathbf{2}}}$$

Die Messung mit Stickstoff dient somit einfach als Eichung.

Wie schon gesagt, ist die Kenntnis des relativen Bremsvermögens der untersuchten Gase unerlässlich. Dieses ist für viele Stoffe, insbesondere Gase, experimentell bestimmt worden<sup>21</sup>). Die Werte sind in Fig. 12 in Funktion der Kernladungszahl der Substanz eingetragen. Die hier speziell interessierenden Daten sind die folgenden:

 $N_2 : s = 0.98$   $O_2 : s = 1.08$  A : s = 1.94



Relatives atomares Bremsvermögen für  $\alpha$ -Teilchen in Funktion der Kernladung. Interpolierter Wert für Chlor: s=1,85.

Zwar wurden diese Ergebnisse mit α-Teilchen einer Energie von etwa 6 MeV gewonnen. Im Kanal unserer Ionisationskammer erleiden aber die α-Teilchen eine Bremsung von ca. 3 MeV auf ca. 1,5 MeV. Doch ist in diesem Bereich und bei den in Frage kommenden Kernen von Stickstoff bis Argon die Energieabhängigkeit des Bremsvermögens zu vernachlässigen<sup>22</sup>).

Damit können die Resultate aus Fig. 11 ausgewertet werden. Wir setzen im folgenden  $T_0=T_1=T_2=288^{\rm o}\,{\rm K}$ , da die Temperatur während der Messungen ziemlich genau 15°C betrug.

# a) Ionisationsarbeit in Sauerstoff.

Aus der Eichung mit Stickstoff hatte sich ergeben (S. 121)  $R_{\rm eff_1}=0.845~{\rm cm}$ . Mit den Daten  $p_1=p_2=727~{\rm mm}$  Hg,  $s_1=0.98$  und  $s_2=1.08$  berechnet man aus Gleichung (3) eine wirksame Reichweite in Sauerstoff  $R_{\rm eff_2}=0.76~{\rm cm}$ ; dem entspricht eine wirksame Energie  $E_{\rm eff_2}=1.43~{\rm MeV}$ . Anderseits entnimmt man der Messkurve mit Sauerstoff (Kurve  $O_2$  in Fig. 11) eine pro  $\alpha$ -Teilchen erzeugte Ladung  $Q_2=7.15\cdot 10^{-15}~{\rm C}$ . Für die Ionisationsarbeit in  $O_2$  ergibt sich folglich

$$J_{\mathbf{0_2}} = \frac{E_{ ext{eff_2}} \cdot e}{Q_{\mathbf{2}}} = 32,2 \; ext{eV}$$

Die Übereinstimmung mit dem in der Literatur angegebenen Wert<sup>23</sup>) (32,3 eV) ist sehr gut. (In Sauerstoff wird eine kleinere Ladung registriert als in Stickstoff, trotz der kleineren Ionisationsarbeit, weil der Einfluss des grössern Bremsvermögens überwiegt.)

## b) Ionisationsarbeit in Argon.

Mit den auf die Messung mit Argon bezüglichen Werten  $s_3=0.97,\ p_3=725$  mm Hg erhält man  $R_{\rm eff_3}=0.86$  cm und  $E_{\rm eff_3}=1.64$  MeV. Die Messung liefert  $Q_3=10.1\cdot 10^{-15}$  C. Daraus folgt für die Ionisationsarbeit in Argon:

$$J_A = \frac{E_{\text{eff}_3} \cdot e}{Q_3} = 26.0 \text{ eV}$$

Auch hier ist die Abweichung gegenüber dem besten Wert (25,4 eV) nur gering.

Die Messungen an Sauerstoff und Argon haben die verwendete Methode als sehr brauchbar erwiesen.

# 2. Bestimmung der Ionisationsarbeit in Chlor.

Die Messungen mit Chlor waren insofern etwas heikler, als das Poloniumpräparat der Einwirkung von Chlor nicht ganz entzogen war. Vor allem bildete sich aber nach einiger Zeit auf den Cellophan- und Glimmerfolien ein Niederschlag mikroskopischer Tröpfchen einer Chlorverbindung, welcher eine ungleichmässige Absorption der  $\alpha$ -Teilchen und damit eine unzulässig starke Verbreiterung

ihres Energiespektrums zur Folge hatte. Dieser Einfluss war nur zu vernachlässigen, wenn die Füllung der Ionisationskammer mit Chlor, die Eichung des Verstärkers und die Messung innerhalb 10 Minuten durchgeführt werden konnten. Zur Sicherheit wurde die Vergleichsmessung mit Stickstoff sowohl vor als auch nach der Messung mit Chlor ausgeführt. Ebenso wurde der Druck des Chlors vor und nach der Messung festgestellt. Um die Benützung von Energie-Reichweite-Kurven umgehen zu können, wählte man die Drucke von Stickstoff und Chlor derart, dass der Klammerausdruck in Gl. (3) verschwindet. Damit werden die effektive Reichweite und folglich auch die wirksame Energie der α-Teilchen in Chlor und in Stickstoff gleich gross, und das Verhältnis der gemessenen Ionenmengen wird dann direkt gleich dem reziproken Verhältnis der beiden Ionisationsarbeiten.

Die Bedingung für das Verschwinden der Klammer in Gl. (3) lautet: (da wieder  $T_{\bf 0}=T_{\bf 1}=T_{\bf 2}$  ist)

$$\frac{p_2}{p_1} = \frac{s_1}{s_2} \;, \quad \frac{p_1, s_1 \; \text{Druck und relat. Bremsvermögen von N}_2}{p_2, \, s_2 \; \; ,, \qquad ,, \qquad ,, \qquad ,, \qquad ,, \qquad ,, \qquad \text{Cl}_2}$$

Nun ist zwar das Bremsvermögen von Chlor experimentell noch nicht bekannt. Doch kann man dank der monotonen Abhängigkeit des Bremsvermögens von der Kernladung, wie sie in Fig. 12 dargestellt ist, mit genügender Genauigkeit den interpolierten Wert für Chlor aus der Kurve entnehmen. Dies ist umso eher zulässig, als der direkt benachbarte Wert von Argon sehr gut bekannt ist. Als Grundlage für die Bestimmung der Ionisationsarbeit in Chlor dient im folgenden der Wert s=1,85 für das Bremsvermögen für  $\alpha$ -Teilchen von Chlor. Wie bei Argon kann die Energieabhängigkeit des Bremsvermögens vernachlässigt werden.

Zum Druck  $p_1 = 725 \text{ mm}$  Hg muss nun nach der obigen Bedingung der Druck  $p_2 = 386 \text{ mm}$  Hg gewählt werden.

In Fig. 13 ist das Resultat einer Messung dargestellt. Die Kurve rechts bezieht sich auf Chlor. Die ausgezogene der mit N bezeichneten Kurven wurde vor der Messung mit Chlor, die gestrichelte nachher aufgenommen. Als Vergleichspunkte dienen die Lagen der Maxima. Aus den Stickstoffkurven liest man eine mittlere Ladungsmenge pro  $\alpha$ -Teilchen ab von

$$Q_1 = 6.4 \cdot 10^{-15} \,\mathrm{C},$$

aus der Chlorkurve eine solche von

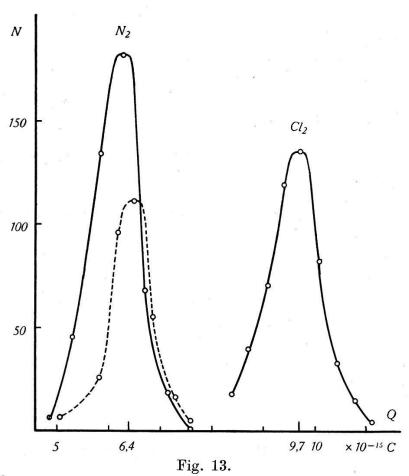
$$Q_2 = 9.7 \cdot 10^{-15} \,\mathrm{C}.$$

Somit erhält man als Ionisationsarbeit in Chlor

$$J_{Cl} = J_1 \cdot rac{Q_1}{Q_2} = 35,0 \cdot rac{6,4}{9,7} = 23,1 \; \mathrm{eV/Ionenpaar}.$$

Abschätzung der Messgenauigkeit:

a) Die Schwankungen der Eichspannung und die Ungenauigkeit beim Zeichnen der Eichkurve ergeben einen Fehler in der Ladungsmessung von  $\pm 0.02 \cdot 10^{-15}$  C.



Bestimmung der Ionisationsarbeit in Chlor. Ionisation von  $\alpha$ -Teilchen gleicher Energie in Stickstoff und in Chlor.

- b) Die Einteilung der Ausschläge in Intervalle von  $\frac{1}{2}$  mm (wie sie bei dieser Messung vorgenommen wurde) bewirkt einen Fehler von  $\pm 0.1 \cdot 10^{-15}$  C.
- c) Aus der Kurve kann die Lage des Maximums auf  $\pm$  0,05 · 10<sup>-15</sup> C genau abgelesen werden.

Dies ergibt eine Ungenauigkeit für die Messung mit Stickstoff von  $\pm$  0,17 · 10<sup>-15</sup> C oder  $\pm$  2,7%.

d) Bei der Messung mit Chlor bewirkt die Ungenauigkeit von  $\pm 2$  mm Hg in der Einstellung des Druckes einen zusätzlichen Fehler von höchstens  $\pm 0.05 \cdot 10^{-15}$  C.

Die in Chlor gemessene Ladung ist somit mit einem Fehler von  $\pm 0,22 \cdot 10^{-15}$  C oder  $\pm 2,3\%$  behaftet. Daraus folgt ein maximaler prozentualer Fehler in der mittleren Ionisationsarbeit in Chlor von  $\pm 5\%$  oder ein absoluter von  $\pm 1,2$  eV.

Es wurden drei Messungen ausgeführt, mit den Resultaten  $J_{CI}=23,1,\ 23,2$  und 24,3 eV. Der Mittelwert beträgt:

$$J_{\it Cl}=23.5\pm1.2~{
m eV}$$
 pro Ionenpaar.

Dieser Wert ist kleiner als er bei andern zweiatomigen Molekülen gefunden wird und liegt eher im Gebiet der Ionisationsarbeiten einatomiger Gase (z. B. A: 25,4, X: 20,7 eV). Während aber die mittlere Ionisationsarbeit in Edelgasen mit zunehmender Ordnungszahl wächst, existiert eine einfache Gesetzmässigkeit bei mehratomigen Gasen nicht, vielmehr sind individuelle Eigenschaften der Moleküle massgebend.

Unserem verehrten Lehrer, Herrn Professor Dr. P. Scherrer, danken wir herzlich für das Interesse, das er dieser Arbeit entgegengebracht hat.

Dem Aluminium-Fonds Neuhausen sind wir für die Überlassung von Mitteln zur Beschaffung von Apparaten zu Dank verpflichtet.

Zürich, Physikalisches Institut der E.T.H.

#### Literaturverzeichnis.

- 1) T. OKUDA, K. OGATA, K. AOKI und Y. SUGAWARA, Phys. Rev. 58, 578, 1940.
- 2) J. Mattauch und S. Flügge, Physikal. Z. 42, 1941.
- 3) J. Mattauch und S. Flügge, Kernphysikalische Tabellen, Berlin, 1942.
- 4) F. W. ASTON, Proc. Roy. Soc. 163, 391, 1937.
- <sup>5</sup>) C. J. Brasefield und E. Pollard, Phys. Rev. **50**, 296, 1936.
- 6) E. F. Schrader und E. Pollard, Phys. Rev. 59, 277, 1941.
- 7) J. MATTAUCH und S. FLÜGGE, Physikal. Z. 43, 1, 1942.
- 8) E. Pollard, Phys. Rev. 57, 1186, 1940.
- <sup>9</sup>) E. B. Andersen, Z. phys. Chem. B 32, 237, 1936.
- <sup>10</sup>) W. F. LIBBY und D. D. LEE, Phys. Rev. **55**, 245, 1939.
- <sup>11</sup>) H. LEVI, Nature 145, 571, 1940.
- <sup>12</sup>) R. D. O'NEAL, Phys. Rev. **59**, 109, 1941.
- <sup>13</sup>) M. D. KAMEN, Phys. Rev. **60**, 537, 1941.

- <sup>14</sup>) E. Amaldi, O. d'Agostino, E. Fermi, B. Pontecorvo, F. Rasetti und E. Segré, Proc. Roy. Soc. 149, 522, 1935.
- <sup>15</sup>) O. Huber, O. Lienhard und H. Wäffler, Helv. Phys. Acta, XV, 314, 1942.
- <sup>16</sup>) F. P. TREADWELL, Lehrbuch der analyt. Chemie, II. Bd., 11. Aufl., 713.
- <sup>17</sup>) P. Huber, Helv. Phys. Acta, XIV, 164, 1941.
- 18) E. Baldinger, P. Huber und H. Staub, Helv. Phys. Acta, XI, 245, 1938.
- <sup>19</sup>) T. W. Bonner, Phys. Rev. **59**, 239, 1941.
- <sup>20</sup>) O. Huber, P. Huber und P. Scherrer, Helv. Phys. Acta, XIII, 209, 1940.
- <sup>21</sup>) M. S. LIVINGSTON und H. A. BETHE, Rev. mod. Physic, 9, 268, 1937.
- <sup>22</sup>) Guerney, Proc. Roy. Soc. 107, 340, 1925.
   Gibson und Eyring, Phys. Rev. 30, 54, 1927.
- <sup>23</sup>) E. RUTHERFORD, Radiations from Radioact. Subst. 81, 1930.
- <sup>24</sup>) Siehe <sup>21</sup>), S. 163 und <sup>3</sup>), S. 59.
- <sup>25</sup>) J. Nemilov, Journ. exp. theoret. Phys. (russ.) 9, 1029, 1939; Physikal. Berichte 1940, 2152.