Helvetica Physica Acta
29 (1956)
1
(, )-Prozesse an mittelschweren und schweren Elementen
Heinrich, F. / Wäffler, H. / Walter, M.
https://doi.org/10.5160/apolo.112602

#### 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. <u>Mehr erfahren</u>

#### **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. <u>En savoir plus</u>

#### 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. <u>Find out more</u>

# Download PDF: 09.08.2025

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

# $(\gamma, \alpha)$ -Prozesse an mittelschweren und schweren Elementen

von F. Heinrich, H. Wäffler und M. Walter.

Physikalisches Institut der Universität Zürich.

(15. XI. 1955.)

Summary. Integral  $(\gamma, \alpha)$ -yields due to 31 MeV-Bremsstrahlung are presented for V<sup>51</sup>, Ge<sup>73</sup>, In<sup>115</sup>, Sb<sup>121</sup>, Tl<sup>203</sup>. The experimental ratios of the  $(\gamma, \alpha)$ - to  $(\gamma, n)$ yields have been determined for these nuclei. The same ratios are also computed from the statistical theory of nuclear reactions. They are in good agreement with the experiment.

The differential excitation curves for the  $(\gamma, \alpha)$ -reactions on Cu<sup>65</sup>, Br<sup>81</sup>, Rb<sup>87</sup>, as measured by HASLAM, KATZ and others, and Ag<sup>109</sup>, measured by DE LABOULAYE and BEYDON have been calculated from the statistical theory. Here too the agreement between the experimental and theoretical curves is satisfactory.

#### I. Einleitung.

Das Gebiet der photonuklearen Prozesse ist im Laufe der letzten Jahre um zahlreiche experimentelle Tatsachen bereichert worden. Das vorliegende Material reicht aber gleichwohl nicht aus, um konsistente theoretische Vorstellungen hinsichtlich des Mechanismus dieser Reaktionstypen zu gewinnen. Als sicher kann zwar gelten, dass im Bereich der mittleren und schweren (A > 40) Kerne, von denen im folgenden ausschliesslich die Rede sein soll, ein erheblicher Teil der Photoprozesse gemäss dem ursprünglichen Bohrschen Schema in zwei statistisch unabhängigen Schritten verläuft. Diese bestehen in 1. einer Absorption des Quants unter Anregung des gesamten Kernsystems und 2. nachfolgender Teilchenemission. Die Wahrscheinlichkeit für den Austritt eines bestimmten Teilchens ist bis auf statistische Faktoren der Grössenordnung Eins durch dessen Eindringwahrscheinlichkeit in den gleichen Kern festgelegt. Daneben existieren aber unzweifelhaft noch ungeklärte Effekte, welche durch das Bohrsche Modell nicht wiedergegeben werden.

Der Absorptionsvorgang weist eine charakteristische, mit der Massenzahl A monoton verlaufende Energieabhängigkeit auf: der nukleare Absorptionsquerschnitt durchläuft in Funktion der Quantenenergie ein steiles Maximum (sog. "Giant Resonance"), dessen Lage sich von  $h\nu \simeq 20$  MeV bei den leichten ( $A \sim 40$ ) Kernen bis zu  $h\nu \simeq 13$  MeV bei den schwersten ( $A \sim 200$ ) verschiebt. Sofern dieser Absorptionsprozess tatsächlich ein kollektives Kernphänomen darstellt, wie das BOHR annimmt, so muss man erwarten, dass die vorausgesetzte statistische Unabhängigkeit von 1. und 2. zutrifft. Dann dürfen die relativen Wahrscheinlichkeiten verschiedener, am gleichen Kern angreifender Photoprozesse nicht davon abhängen, wie der Absorptionsprozess im einzelnen zustandekommt: das Verhältnis ihrer Wirkungsquerschnitte ist durch die statistisch berechneten, relativen Austrittswahrscheinlichkeiten der emittierten Teilchen vollständig bestimmt.

Anderseits sollte sich die Absorption der gesamten Quantenenergie durch ein einzelnes, dem Kernsystem angehörendes Nukleon (sog. Direktprozess) durch eine gegenüber dem statistischen Ansatz erhöhte kinetische Energie, mit welcher dieses Nukleon den Kern verlässt, äussern. Mit zunehmender kinetischer Energie wächst auch die Austrittswahrscheinlichkeit des Nukleons aus dem betreffenden Kern. Infolge der sehr empfindlich von der Austrittsenergie abhängenden Transparenz des Coulombwalls wird die Emission eines Protons durch einen Direktprozess weitaus stärker begünstigt als die Emission eines Neutrons. Die experimentell sichergestellte, im Vergleich zur statistischen Theorie viel zu häufige Emission von Protonen bei Kernphotoprozessen muss deshalb als sicheres Indiz für das Auftreten von Direktprozessen angesehen werden. Es existieren noch keine systematischen Untersuchungen darüber, inwiefern diese Direktprozesse dieselbe "Giant resonance" durchlaufen wie der gesamte Absorptionsquerschnitt.

Ausser Nukleonen werden auch Kernfragmente (D, T, He) in Photoprozessen emittiert. Bei gewissen Kernen, wie beispielsweise Kupfer, übertrifft die gemessene Emissionsrate der Deutonen den statistisch (unter Annahme *präformierter* Deutonen!) berechneten Wert um rund einen Faktor 1000. Es handelt sich hier um einen neuen, weder durch das statistische Modell noch Direktprozesse erklärbaren Effekt.

Was die Emission von Tritonen bei Photoprozessen anbelangt, so ist eine solche in vereinzelten Fällen nachgewiesen worden. Eine systematische Untersuchung der an verschiedenen Isotopen erzielbaren ( $\gamma$ , T)-Ausbeuten liegt jedoch noch nicht vor.

Auch über die  $(\gamma, \alpha)$ -Prozesse an mittleren und schweren Kernen sind unsere Kenntnisse noch lückenhaft, obwohl diese experimentell viel leichter zugänglich sind als der Reaktionstyp  $(\gamma, D)$  bzw.  $(\gamma, T)$ . Zahlreiche Isotope führen nämlich bei Abspaltung eines  $\alpha$ -Teilchens auf einen radioaktiven Restkern, was eine zuverlässige und bequeme Methode zur Ausbeutebestimmung der Reaktion liefert. HASLAM u. a.<sup>1</sup>) haben die differentielle Ausbeute der ( $\gamma$ ,  $\alpha$ )-Reaktion an den Isotopen Cu<sup>65</sup>, Br<sup>81</sup>, Rb<sup>87</sup> nach dieser Methode gemessen. Ein Vergleich mit der Theorie wurde nicht durchgeführt. Rein grundsätzlich wäre zu diesen Messungen noch zu bemerken, dass sämtliche gemessenen Elemente auch noch ein um zwei Neutronen ärmeres Isotop besitzen, welches durch einen ( $\gamma$ , 2 p)-Prozess auf denselben Restkern führt wie der gesuchte ( $\gamma$ ,  $\alpha$ )-Prozess. Es wurden somit in Wirklichkeit die Ausbeuten von ( $\gamma$ ,  $\alpha$ )-Prozess am einen und ( $\gamma$ , 2 p)-Prozess am andern Isotop zusammen bestimmt.

DE LABOULAYE und BEYDON<sup>2</sup>) untersuchten die Reaktion Ag<sup>109</sup> ( $\gamma$ ,  $\alpha$ ) Rh<sup>105</sup> im Bereich von 16 bis 24 MeV Quantenenergie. Auch hier wurde der aus dem Prozess Ag<sup>107</sup> ( $\gamma$ , 2 p) stammende Anteil der Rh<sup>105</sup>-Aktivität mitgemessen. Diese Autoren berichten über einen gegenüber der statistischen Theorie um etwa einen Faktor 1000 zu grossen Wirkungsquerschnitt für den ( $\gamma$ ,  $\alpha$ )-Prozess.

In einer vorläufigen Untersuchung haben NABHOLZ u. a.<sup>3</sup>) den  $(\gamma, \alpha)$ -Prozess an Br<sup>79,81</sup> mit der 17,6-MeV-Linie der Lithiumgammastrahlung gemessen. Der experimentelle Wirkungsquerschnitt ergab sich in befriedigender Übereinstimmung mit der statistischen Theorie.

In der vorliegenden Arbeit wird nun versucht zu entscheiden, ob das statistische Kernmodell die  $(\gamma, \alpha)$ -Prozesse richtig wiedergibt, oder ob auch hier allfällige neue und unvorhergesehene Effekte auftreten.

#### II. Durchführung der Experimente.

Die nachstehend beschriebenen Versuche wurden mit dem 31-MeV-Betatron der Universität Zürich durchgeführt\*). Ziel dieser Experimente war der  $(\gamma, \alpha)$ -Prozess an den Isotopen V<sup>51</sup>, Ge<sup>73</sup>, In<sup>115</sup>, Sb<sup>121</sup>, Tl<sup>203</sup>. Der Nachweis der Reaktion erfolgte in allen Fällen auf Grund der Radioaktivität des bzw. Produktkerns (Sc<sup>47</sup>, Zn<sup>69</sup>, Ag<sup>111</sup>, In<sup>117</sup>, Au<sup>199</sup>). Die gewählten Isotope besitzen weit auseinanderliegende Ordnungszahlen und haben mit Ausnahme des Indiums ausserdem die Eigenschaft, dass für sie keine an Nachbarisotopen desselben Elements angreifenden Nebenreaktionen existieren, die auf den gleichen Endkern wie der  $(\gamma, \alpha)$ -Prozess führen können. Zu solchen Nebenreaktionen gehört in erster Linie der  $(\gamma, 2 p)$ -Prozess, der immer dann auf den gleichen Kern wie der

<sup>\*)</sup> Wir möchten Herrn Prof. Dr. H. R. SCHINZ, Direktor der radiologischen Klinik, für das grosse Entgegenkommen, mit welchem er das seinem Institut angegliederte Betatron für unsere Untersuchungen zur Verfügung stellte, auch an dieser Stelle herzlich danken.

 $(\gamma, \alpha)$ -Prozess führt, wenn neben dem zu untersuchenden Ausgangsisotop ein um zwei Neutronen ärmeres existiert (z. B. Cu<sup>63, 65</sup>, Rb<sup>85, 87</sup>, Ag<sup>107, 109</sup> usw.). Die Aktivierung erfolgte in der Weise, dass jedes Präparat zusammen mit einer dünnen (12 mg/cm<sup>2</sup>) Kupferfolie bei der maximalen Grenzenergie (31 MeV) bestrahlt und die Ausbeute\*) des  $(\gamma, \alpha)$ -Prozesses jeweils, je nach der Länge der auftretenden Aktivität, mit der Ausbeute eines der beiden Reaktionsprodukte Cu<sup>63</sup> ( $\gamma$ , n)Cu<sup>62</sup> ( $T_{1/2} = 10$  min) bzw. Cu<sup>65</sup>( $\gamma$ , n) Cu<sup>64</sup> ( $T_{1/2} = 12,8$  h) verglichen wurde. Zur Aktivitätsmessung diente ein Stirnzählrohr von 22 mm Innendurchmesser, das mit einer Glimmerfolie von 2,5 mg/cm<sup>2</sup> abgeschlossen war. Über die Anordnung von Zählrohr und Präparat orientiert Fig. 1. Ein Nachweis der  $(\gamma, \alpha)$ -Prozesse durch direkte Messung des bestrahlten Präparats auf dem Zählrohr gelang nur im Fall des V<sup>51</sup>. Bei allen anderen Isotopen erwies sich die im  $(\gamma, \alpha)$ -Prozess induzierte Aktivität als viel zu schwach, um neben den sehr starken, durch  $(\gamma, n)$ erzeugten Aktivitäten noch wahrgenommen zu werden. Hier gelang es indessen, die entstandenen radioaktiven Körper auf Grund ihrer chemischen Verschiedenheit zu trennen. Zu der in den einzelnen Fällen angewandten experimentellen Technik ist folgendes zu bemerken.

# 1. $V^{51}(\gamma, \alpha) Sc^{47}$ .

Vanadium wurde als V<sub>2</sub>O<sub>5</sub> sowie auch in metallischer Form mehrmals bis zu 36 Stunden lang bestrahlt. Aus Intensitätsgründen musste das Präparat in dicker Schicht (Schichtdicke > Reichweite der  $\beta$ -Teilchen) über dem Zählrohr angeordnet werden. Die 3,4 d-Aktivität des Sc<sup>47</sup> trat in dieser Anordnung mit einer den Nulleffekt (10 Stösse/min) rund 30fach übersteigenden Anfangsstosszahl auf. Durch Aufnahme der Absorptionskurven der  $\beta$ -Strahlung ( $E_{\beta} =$ 0,6 MeV) in Al und Fe wurde die mittlere Reichweite  $\overline{R}$  derselben für  $V_2O_5$  ermittelt (auf Grund massenproportionaler Umrechnung). Es ergab sich  $\overline{R} = 20$  mg/cm<sup>2</sup>. Die 12,8 h-Aktivität der als Vergleichssubstanz mitbestrahlten Cu-Folie gelangte in der gleichen Anordnung zur Messung. Das für einen Vergleich mit der Theorie (s. III) zweckmässigste Resultat, nämlich die experimentelle Bestimmung der relativen Ausbeuten für den  $(\gamma, \alpha)$ - und den  $(\gamma, n)$ -Prozess an ein- und demselben Kern, lässt sich im Falle des Vanadiums nicht unmittelbar erhalten. Neben dem Isotop V<sup>51</sup> kommt

<sup>\*)</sup> Unter Ausbeute schlechtweg wird im folgenden stets die auf das Isotop im Endpunkt der Bestrahlung bezogene, in einer bestimmten Zählrohr-Anordnung gemessene Sättigungsaktivität verstanden.

nämlich auch das seltene Isotop V<sup>50</sup> (relative Häufigkeit 0,3%) in der Natur vor. Der ( $\gamma$ , n)-Prozess an Vanadium kann infolgedessen zu keiner messbaren Aktivität führen. Aus diesem Grunde wurde hier zunächst einmal zum Vergleich die in dünner Schicht ( $\sim 10 \text{ mg/cm}^2$ ) induzierte 10-min-Aktivität des im Prozess Cu<sup>63</sup> ( $\gamma$ , n)Cu<sup>62</sup> erzeugten Isotops Cu<sup>62</sup> gewählt. Cu<sup>62</sup> hat gegenüber Cu<sup>64</sup> den Vorteil, eine reine Positronenaktivität und eine hohe Beta-Grenzenergie (3 MeV) zu besitzen, was die Auswertung sehr vereinfacht. Das Ausbeuteverhältnis A (Cu<sup>62</sup>)/A(Cu<sup>64</sup>) wurde für die





Schnitt durch Stirnzählrohr Z und Präparathalter H.  $a = \text{Polystyrenfolie 1,5 mg/cm}^2, b = \text{Glimmerfolie 2,5 mg/cm}^2.$ 

vorliegende Messanordnung gesondert bestimmt. Es ergab sich als Mittelwert aus 4 Runs

$$A(Sc^{47})/A(Cu^{62}) = 1,3 \cdot 10^{-2}.$$

Im folgenden wird unter der *nuklearen* Ausbeute  $a(\gamma, x)$  eines Kernphotoprozesses der über das Bremsspektrum integrierte Wirkungsquerschnitt verstanden:

$$a(\gamma, x) = \int_{0}^{E_{\gamma} \max} \sigma_{(\gamma, x)}(E_{\gamma}) \cdot N(E_{\gamma}) dE_{\gamma}.$$
(1)

Es bedeuten:

 $E_{\gamma \max}$  = Maximalenergie des Bremsspektrums,  $\sigma_{(\gamma, x)}(E_{\gamma})$  = Wirkungsquerschnitt der Reaktion  $(\gamma, x)$ ,  $N(E_{\gamma}) dE_{\gamma}$  = Anzahl der Quanten im Energieintervall  $E_{\gamma} \cdots E_{\gamma} + dE_{\gamma}$ . Damit berechnet sich das Verhältnis der nuklearen Ausbeuten für zwei Kernphotoprozesse, speziell  $a(\gamma, \alpha)V^{51}/a(\gamma, n)Cu^{63}$ , in folgender Weise aus den experimentellen Daten:

$$\frac{a(\gamma, \alpha)_{\mathbf{V}^{31}}}{a(\gamma, n)_{\mathrm{Cu}^{63}}} = \frac{A(\mathrm{Sc}^{47}) \cdot n_{\mathrm{Cu}^{63}} \cdot \delta_{\mathrm{Cu}} \cdot \beta_{\mathrm{Cu}^{62}}}{A(\mathrm{Cu}^{62}) n_{\mathbf{V}^{51}} \cdot \overline{R}_{\mathbf{V}_2 \mathbf{O}_5} \cdot \beta_{\mathrm{Sc}^{47}} \cdot r_{\mathbf{V}_2 \mathbf{O}_5}} = (7 \pm 2) \cdot 10^{-3}.$$
(2)

Hierin bedeuten: *n* Anzahl Kerne pro cm<sup>3</sup> Substanz,  $\delta$  Dicke der Cu-Folie (cm),  $\overline{R}$  mittlere Reichweite (cm) der  $\beta$ -Teilchen im Präparat,  $\beta$  Bruchteil der durch Präparathalter und Zählrohrfenster (s. Fig. 1) durchgelassenen  $\beta$ -Teilchen. ( $\beta_{Cu^{62}} = 0.995$ ;  $\beta_{Se^{47}} = 0.86$ );  $r_{V_2O_5} \simeq 1.25$  Faktor, um welchen sich die Stosszahl infolge Rückstreuung der  $\beta$ -Teilchen im Präparat erhöht. (Im Falle der dünnen Cu-Folie ergaben sich für die Rückstreuung vernachlässigbar kleine Werte.)

Neben der langlebigen Sc<sup>47</sup>-Aktivität trat in den bestrahlten Vanadium-Präparaten auch noch eine kurzlebige, den Nulleffekt um rund einen Faktor 10 übersteigende Aktivität auf, welche durch Halbwertszeit- und Absorptionsmessungen eindeutig als Sc<sup>49</sup>( $T_{1/2} =$ 57 min,  $E_{\beta}$ - = 1,8 MeV) identifiziert werden konnte. Diese ist somit der Reaktion V<sup>51</sup>( $\gamma$ , 2 p)Sc<sup>49</sup> zuzuschreiben. Es erschien im Hinblick auf die unter I. erwähnten Fälle, bei denen ein ( $\gamma$ , 2 p)-Prozess auf das gleiche Endprodukt führen kann wie der ( $\gamma$ ,  $\alpha$ )-Prozess, von Interesse, am V<sup>51</sup> das Verhältnis der Ausbeuten für diese beiden Reaktionen zu bestimmen. Die Messung ergab folgenden Wert:

$$\frac{a(\gamma, 2p)_{\nabla^{51}}}{a(\gamma, \alpha)_{\nabla^{51}}} = 1,9 \cdot 10^{-2}.$$

Dieses Ergebnis macht es sehr wahrscheinlich, dass der  $(\gamma, 2 p)$ -Prozess für ein gegebenes Element stets grössenordnungsmässig schwächer als der  $(\gamma, \alpha)$ -Prozess auftritt, so dass eine Fälschung der Ausbeutemessungen von  $(\gamma, \alpha)$ -Prozessen durch gleichzeitig ablaufende  $(\gamma, 2 p)$ -Prozesse tatsächlich nicht zu befürchten ist. Diese Vermutung konnte im Falle des Indiums (s. II, 4) bestätigt werden.

2. Ge<sup>73</sup>(
$$\gamma$$
,  $\alpha$ ) Zn<sup>69, 69\*</sup>.

Das aktive Zink wurde vom Germanium nach folgender Methode abgetrennt: In Pulverform bestrahltes Germanium (2g) wurde mit 6 mg Zn-Pulver als Trägersubstanz vermischt, im abgeschlossenen Quarzrohr verschmolzen und die auf diese Weise entstandene Legierung anschliessend im Hochvakuum auf 1100° C erhitzt. Dabei destilliert das Zink ab und kann als Spiegel auf einem wasser-

gekühlten Rohr niedergeschlagen werden. Dieser Niederschlag wurde nach Beendigung des Destillationsprozesses in 6 cm<sup>3</sup> heisser, 10% iger Salpetersäure aufgenommen und der Lösung 3 mg Gallium zugesetzt. Letzteres dient als Träger für die bei der Bestrahlung durch ( $\gamma$ , p)-Prozesse entstehenden aktiven Gallium-Isotope, welche bei der Destillation möglicherweise mitgerissen werden. Nach Verdünnen der Lösung auf 20 cm<sup>3</sup> wurde mit Soda neutralisiert und in der Hitze mit einem geringen Überschuss von Natriumanthranilat gefällt. Der Niederschlag wurde filtriert und gewaschen und lag nach 15 Minuten Trockenzeit in einer Schichtdicke von ca. 7 mg/cm<sup>2</sup> zur Messung vor.

Die Ausbeute dieses Trennverfahrens wurde für jeden durchgeführten Run gravimetrisch bestimmt; die erhaltenen Werte schwankten zwischen 50 und 70%. Das aktive Isotop entsteht sowohl im Grundzustand ( $T_{1/2} = 52 \text{ min}, E_{\beta} = 0.9 \text{ MeV}$ ) als auch im isomeren Anregungszustand ( $T_{1/2} = 13,9$  h, sehr schwach konvertierter Gamma-Übergang in den Grundzustand), was bei der Berechnung der Ausbeute zu berücksichtigen ist. Die im Zählrohr gemessenen Anfangsaktivitäten betragen rund das 100fache des Nulleffektes für die lange, bzw. das 30fache für die kurze Aktivität. Man hat ferner zu beachten, dass neben dem zu untersuchenden  $\operatorname{Ge}^{73}(\gamma, \alpha)$ -Prozess auch noch der  $\operatorname{Ge}^{74}(\gamma, \alpha n)$ -Prozess auftreten kann, welcher ebenfalls auf das Isotop Zn<sup>69</sup> führt. Die natürliche Häufigkeit des Ge<sup>74</sup> ist überdies 4,8mal grösser als die von Ge<sup>73</sup>. Da eine experimentelle Trennung dieser beiden Reaktionen nicht möglich ist, so wurde der Beitrag des  $(\gamma, \alpha n)$ -Prozesses zur gesamten gemessenen Zn<sup>69</sup>-Aktivität rechnerisch, unter Zugrundelegung der statistischen Theorie, abgeschätzt und vom gemessenen Wert abgezogen. Es ergibt sich, dass 2/3 der gesamten Aktivität des Zn<sup>69</sup> dem ( $\gamma$ ,  $\alpha$ )-Prozess zuzuschreiben sind.

Unter Berücksichtigung aller angeführten Korrekturen und vorsichtiger, wenn auch etwas willkürlicher Bemessung der Fehlergrenzen im Hinblick auf die dem Trennverfahren wie auch der rechnerischen Abschätzung anhaftende beträchtliche Unsicherheit, ergibt sich als Mittelwert aus 9 verschiedenen Runs für das nukleare Ausbeuteverhältnis

$$\frac{a(\gamma, \alpha)_{\rm Ge^{73}}}{a(\gamma, n)_{\rm Cu^{63}}} = (1.5 \pm 0.8) \cdot 10^{-2}.$$

Da auch bei Ge<sup>73</sup> der  $(\gamma, n)$ -Prozess auf das stabile Ge<sup>72</sup> führt, so ist ein Ausbeutevergleich zwischen  $(\gamma, \alpha)$  und  $(\gamma, n)$  an ein- und demselben Isotop nach der hier angewandten Methode nicht möglich.

# 3. $\operatorname{In^{115}}(\gamma, \alpha) \operatorname{Ag^{111}}(T_{1/2} = 7.5 d, E_{\beta^-} = 1.1 \text{ MeV} (> 90 \%)).$

Das als Folie (4 g) bestrahlte Indium wurde zusammen mit den Trägersubstanzen Silber (8 mg) und Cadmium (10 mg) in 12 cm<sup>3</sup> heisser Salpetersäure gelöst. Die Cadmiumbeigabe bezweckte, ein allfälliges Mitreissen von aktivem, bei der Bestrahlung entstandenem Cadmium zu verhindern. Aus der heissen, auf 25 cm<sup>3</sup> verdünnten Lösung wurde das Silber als AgCl durch tropfenweise Zugabe von HCl gefällt. Nach Erkalten im Dunkeln wurde der Niederschlag auf ein kleines Papierfilter gebracht, mehrfach gewaschen und bei 130° C getrocknet. Das Präparat lag in feinverteilter Form in Schichtdicken von 4-5 mg/cm<sup>2</sup> zur Messung vor. Die Ausbeute des Trennverfahrens wurde gravimetrisch bestimmt, sie lag zwischen 80 und 93%. Die Anfangsstosszahl der Ag<sup>111</sup>-Aktivität am Zählrohr betrug etwa das Zehnfache des Nulleffekts. Ein Vergleich zwischen  $(\gamma, \alpha)$ - und  $(\gamma, n)$ -Prozess ist bei In<sup>115</sup> gut durchführbar, da der Produktkern In<sup>115</sup> genau untersucht ist und auf bequem messbare Aktivitäten führt: den Grundzustand In<sup>114</sup> $(T_{1/2} = 72 \text{ sec}, E_{\beta} =$ 1,98 MeV,  $\beta^{-}/\beta^{+} > 1000/1$ ) sowie den isomeren Anregungszustand In<sup>114\*</sup> ( $T_{1/2} = 49d$ ,  $E_{\gamma} = 0.19$  MeV). Für die Messung des ( $\gamma$ , n)-Prozesses wurden zwei Bestrahlungsreihen von jeweils verschiedener Dauer durchgeführt: 25 Sekunden für die 72 sec-, bzw. einige Stunden für die 49 d-Aktivität. Als Präparat diente eine dünne  $(15 \text{ mg/cm}^2)$ Indiumfolie, welche unmittelbar nach der Bestrahlung auf dem Stirnzähler gemessen wurde. Beide Messungen, sowohl der mit der chemischen Trennung verbundene  $(\gamma, \alpha)$ -Prozess wie auch die direkt untersuchten  $(\gamma, n)$ -Prozesse, wurden auf das gleiche Kupferpräparat als Monitor bezogen. Nach Korrektur auf die chemische Ausbeute der Silbertrennung sowie die Absorptionsverluste in der Fensterfolie des Stirnzählers ergibt sich das nukleare Ausbeuteverhältnis

$$\frac{a(\gamma, \alpha)_{\mathrm{In}^{115}}}{a(\gamma, n)_{\mathrm{Cu}^{63}}} = 8,4 \cdot 10^{-4}; \quad \frac{a(\gamma, \alpha)_{\mathrm{In}^{115}}}{a(\gamma, n)_{\mathrm{In}^{115}}} = 1,5 \cdot 10^{-4}.$$

Aus dem Isotop In<sup>115</sup> entsteht ferner durch  $(\gamma, 2 p)$ -Prozess der radioaktive Körper Ag<sup>113</sup>, dessen Halbwertszeit  $(T_{1/2} = 5,3 h)$  und Grenzenergie  $(E_{\beta} = 2,0 \text{ MeV})$  für einen Nachweis sehr günstig liegen. Es ist uns gleichwohl nicht gelungen, diese Aktivität im Silberniederschlag nachzuweisen. Aus dem negativen Ergebnis dieses Versuches kann man auf ein Ausbeuteverhältnis

$$\frac{a(\gamma, 2 p)_{\text{In}^{115}}}{a(\gamma, \alpha)_{\text{In}^{115}}} < 0.5 \%$$

schliessen. Damit ist die bereits im Falle des Vanadiums festgestellte, im Vergleich zum  $(\gamma, \alpha)$ -Prozess grössenordnungsmässig kleinere Ausbeute der  $(\gamma, 2 p)$ -Reaktion auch für diesen mittelschweren Kern bestätigt.

# 4. Sb<sup>121</sup>( $\gamma$ , $\alpha$ ) In<sup>117</sup>( $T_{1/2} = 1.9$ h, $E_{\beta^-} = 1.73$ MeV)\*).

Das aktive Indium wurde von dem als Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bestrahlten Antimon folgendermassen abgetrennt: Das Präparat (5-10 g Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) wurde in HCl konz. gelöst und der Lösung 3 mg InCl als Träger zugesetzt. Aus dieser Lösung kann durch mehrfaches Eindampfen und Wiederaufnehmen in HCl der überwiegende Teil des Antimons als flüchtiges SbCl<sub>3</sub> entfernt werden. Der Rückstand wurde in 0,3 n-HCl aufgenommen, mit einem Puffergemisch von Natriumacetat und Essigsäure versetzt und mit NH<sub>3</sub> neutralisiert. Nach Fällung bei 75° C mit essigsaurer Oxichinolinlösung wurde der Niederschlag filtriert, sorgfältig gewaschen und getrocknet. Der chemische Niederschlag lag in dünner Schicht (ca. 5 mg/cm<sup>2</sup>) vor, die maximale Stosszahl betrug rund das Zehnfache des Untergrundes. Da auch zur Messung der im Prozess  $Sb^{121}(\gamma, n)$  erzeugten, sehr starken Sb<sup>120</sup>-Aktivität ( $T_{1/2} = 16 \text{ min}$ ) eine Schichtdicke von ca. 1 mg/cm<sup>2</sup> Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub> genügte, so brauchte in diesem Fall weder Rückstreuung noch Selbstabsorption berücksichtigt zu werden. Von den bestrahlten, für die chemische Trennung bestimmten Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Proben wurde ein kleiner Teil weggenommen und für die Messung der Sb<sup>120</sup>-Aktivität verwendet. Die aus 5 Runs gemittelte Ausbeute ergab  $A(\text{In}^{117})/A(\text{Sb}^{120}) = 1.5 \cdot 10^{-4}$  (auf gleiche Ausgangsmengen Sb bezogen). Die Zählrohrabsorption ist für die beiden aktiven Körper praktisch gleich, so dass das gemessene Ausbeuteverhältnis dem nuklearen Ausbeuteverhältnis gleichgesetzt werden kann:

$$\frac{a(\gamma, \alpha)_{\mathrm{Sb}^{121}}}{a(\gamma, n)_{\mathrm{Sb}^{121}}} = (1, 5 \pm 0, 3) \cdot 10^{-4}.$$

Auch dem Antimon wurde während der Bestrahlung ein Cu-Monitor beigegeben, um auch noch die auf Kupfer bezogene ( $\gamma$ ,  $\alpha$ )-Ausbeute bestimmen zu können. Diese ergibt sich zu

$$\frac{a(\gamma, \alpha)_{\mathrm{Sb}^{121}}}{a(\gamma, n)_{\mathrm{Cu}^{63}}} = (2, 3 \pm 0, 4) \cdot 10^{-4}.$$

5.  $\mathrm{Tl}^{203}(\gamma, \alpha) \mathrm{Au}^{199}(T_{1/2} = 3, 3d, E_{\beta^-} = 0, 32 \mathrm{MeV}).$ 

Das bestrahlte Tl (8 bis 10 g) wurde zusammen mit 50 mg metallischem Au als Träger in Königswasser gelöst. Die dabei entstandenen Chloride und Nitrate wurden durch mehrfaches Abrauchen mit

<sup>\*)</sup> Anmerkung bei der Korrektur: Dieser Prozess wurde unabhängig von uns auch von P. STOLL und Mitarbeiter (persönliche Mitteilung) beobachtet.

Schwefelsäure in die entsprechenden Sulfate übergeführt. Der verbleibende Rückstand wurde stark verdünnt und das metallische Gold durch Reduktion mit Oxalsäure gefällt. Anschliessend wurde der sorgfältig gewaschene Niederschlag in wässeriger KCN-Lösung aufgenommen, nochmals mit Schwefelsäure abgeraucht und die Fällung wie oben wiederholt. Nach Waschen und Trocknen des Niederschlags lag das Präparat mit einer Flächendichte von ca. 20 mg/cm<sup>2</sup> zur Messung vor. Die Ausbeute dieses chemischen Verfahrens wurde durch Wägung der Trägersubstanz vor und nach dem chemischen Prozess zu 95–98% bestimmt.

Infolge der niedrigen Beta-Energie und der relativ grossen Trägermenge kann das Präparat als praktisch dicke Schicht betrachtet werden. Die Au<sup>199</sup>-Aktivität war äusserst schwach, die Stosszahl am Zählrohr betrug hier nur noch etwa das Dreifache des Nulleffekts.

Die in einer mitbestrahlten Thalliumprobe (in dünner Schicht, ca. 1 mg/cm<sup>2</sup>) gemessene, durch ( $\gamma$ , n)-Prozess induzierte Tl<sup>202</sup>-Aktivität ( $T_{1/2} = 11,5d$ ) lässt keine sehr sichere Ausbeutebestimmung zu. Die Umwandlung in das stabile Hg<sup>202</sup> erfolgt nämlich durch K-Einfang, wobei etwa 5% aller Übergänge von einer Konversionslinie der Energie 0,35 MeV begleitet sind<sup>4</sup>). Der angegebene Prozentsatz lässt sich nicht sehr genau bestimmen, so dass eine lediglich auf der Registrierung der Konversionselektronen im Zählrohr basierende Ausbeutebestimmung ungenau ausfallen muss. Wesentlich besser kann die Ausbeute der im Prozess Tl<sup>205</sup>( $\gamma$ , n)Tl<sup>204</sup> erzeugten Tl<sup>204</sup>-Aktivität ( $T_{1/2} = 2,7a$ ) gemessen werden. Tl<sup>204</sup> ist ein reiner  $\beta$ -Strahler von 0,762 MeV Maximalenergie und daher für Ausbeutemessungen sehr geeignet. Die in mehreren Runs relativ zu Kupfer durchgeführte Ausbeutebestimmung ergab

$$rac{a(\gamma, n)_{{
m Tl}^{203}}}{a(\gamma, n)_{{
m Cu}^{63}}} pprox 10; \quad rac{a(\gamma, n)_{{
m Tl}^{203}}}{a(\gamma, n)_{{
m Cu}^{63}}} = 6, 0.$$

Dass die nukleare Ausbeute an Tl<sup>203</sup> grösser ausfällt als an Tl<sup>205</sup>, widerspricht der sonst überall gemachten Beobachtung, derzufolge von verschiedenen Isotopen des gleichen Elements das schwerere eine grössere ( $\gamma$ , n)-Ausbeute liefert als das leichtere. Es scheint naheliegend, dieses Ergebnis der Unsicherheit in der Bestimmung von  $a(\gamma, n)_{\text{Tl}^{203}}$  zuzuschreiben. Deshalb wurde der an Tl<sup>205</sup> für das Ausbeuteverhältnis gefundene Wert auch als obere Grenze für das Verhältnis

$$a(\gamma, n)_{\text{Tl}^{203}}/a(\gamma, n)_{\text{Cu}^{63}}$$

angenommen. Für den  $(\gamma, \alpha)$ -Prozess ergab sich mit  $A(Au^{199})/A$ 

 $(Cu^{62}) = 1,9 \cdot 10^{-5}; \ \overline{R}_{Au^{199}} = 20 \text{ mg/cm}^2; \ Z_{Au^{199}} = 0,81; \ r_{Au} \cong 1,5 \text{ das}$ nukleare Ausbeuteverhältnis

$$\frac{a(\gamma,\alpha)_{\mathrm{Tl}^{2^{33}}}}{a(\gamma,n)_{\mathrm{Cu}^{63}}} = 1,4\cdot 10^{-4} \text{ und daraus } \frac{a(\gamma,\alpha)_{\mathrm{Tl}^{2^{03}}}}{a(\gamma,n)_{\mathrm{Tl}^{2^{03}}}} = 2,3\cdot 10^{-5}.$$

Die Unsicherheit des letztgenannten Wertes dürfte ca. 50% betragen.

# III. Vergleich der Versuchsergebnisse mit den Resultaten der statistischen Kerntheorie.

Nach der statistischen Theorie stellt sich der Wirkungsquerschnitt einer photonuklearen Reaktion  $(\gamma, b)$  folgendermassen dar:

$$\sigma(\gamma, b) = \sigma_{\gamma}(\text{Einfg}) \; rac{\Gamma_b}{\sum\limits_i \Gamma_i}.$$

 $\sigma_{\gamma}(\text{Einfg})$  ist der gesamte Absorptionsquerschnitt für Quanten einer bestimmten Energie. Er ist im allgemeinen nicht direkt experimentell messbar. Zu seiner theoretischen Berechnung fehlt uns die Kenntnis des Absorptionsmechanismus (giant resonance). Dieser Absorptionsquerschnitt lässt sich nun eliminieren, indem man das Verhältnis von zwei photonuklearen Querschnitten bildet. Gleichzeitig hebt sich dabei auch die Grösse  $\Sigma\Gamma_i$ , d. h. die Summe aus den Niveaubreiten sämtlicher erlaubter Emissionsprozesse, weg.

Man hat beispielsweise

$$\frac{\sigma(\gamma, \alpha x)}{\sigma(\gamma, n x)} = \frac{\Gamma(\alpha x)}{\Gamma(n x)} = \frac{f_{\alpha}(E_{\gamma} - B_{\alpha})}{f_{n}(E_{\gamma} - B_{n})}.$$
(3)

Hierin bedeuten: x ein im Anschluss an den Hauptprozess  $((\gamma, \alpha), (\gamma, n))$ allfälligerweise emittiertes, weiteres Teilchen;  $f_{\alpha}$ ,  $f_{n}$  die bzw. Wahrscheinlichkeiten für Emission eines Alpha-Teilchens oder Neutrons aus dem Zwischenkern. Diese theoretischen Grössen lassen sich bei bekannter Niveauverteilung  $\omega_{R}$  des Restkerns berechnen:

$$f_{b}(E_{b\max}) = \frac{(2 S_{b}+1) m_{b}}{\hbar^{2}} \int_{0}^{E_{b\max}} \sigma_{c}(E_{b}) \cdot E_{b} \cdot \omega_{R}(E_{b\max}-E_{b}) dE_{b}.$$
(4)

 $S_b$ ,  $m_b = \text{Spin bzw.}$  Masse des emittierten Teilchens b,  $\sigma_c = \text{Wirkungsquerschnitt}$  für die Bildung des Compoundkerns im Zustand  $(E_{b\max} - E_b)$  durch Einfang des Teilchens b (inverser Prozess),  $E_b = \text{kinetische Energie}$  des emittierten Teilchens b,  $\omega_R = \text{Niveaudichte}$  des Restkerns in dem nach Emission von b erreichten Energie-zustand.

Die so definierten Wirkungsquerschnitte gelten für jeden möglichen Anregungszustand des erzeugten Restkerns, d. h. bei hinreichend hoher Quantenenergie ist darin auch die Emission eines weiteren Nukleons x (mit überwiegender Wahrscheinlichkeit eines Neutrons) mitinbegriffen. Letzteres ist natürlich nur möglich, wenn der Restkern nach Emission des ersten Teilchens in einem Anregungszustand zurückbleibt, der oberhalb seiner Dissoziationsenergie liegt. Sofern man die gesamte Ausbeute an Teilchen unter Einwirkung von Gammastrahlen bestimmt, so sind solche Mehrfachprozesse in der Messung enthalten. Der einzige praktisch wichtige Fall ist die Messung der totalen Neutronenausbeute, von der im folgenden mehrfach Gebrauch gemacht wird. Bei Messung der im Hauptprozess induzierten Aktivität werden dagegen solche Mehrfachprozesse nicht miterfasst, sie sind somit auch in der Rechnung zu eliminieren. Nun hat die Emission eines Neutrons aus dem Kern, sofern sie energetisch möglich ist, eine viel grössere Wahrscheinlichkeit als die Aussendung elektromagnetischer Strahlung. Man kann deshalb im allgemeinen in guter Näherung annehmen, dass ein Restkern, der sich oberhalb seiner Dissoziationsenergie für Neutronenemission befindet, auch stets noch ein Neutron emittiert. Bei dem schwersten der hier untersuchten Kerne, nämlich Tl<sup>203</sup>, genügt diese Näherung allerdings nicht mehr. Siehe hierzu III. 5. Man erhält somit den Wirkungsquerschnitt für den interessierenden Einfachprozess allein, indem man nur über diejenigen Energiewerte des austretenden Teilchens integriert, die den Restkern in Energiezuständen unterhalb seiner Dissoziationsenergie zurücklassen:

$$f_{b}^{*}(E_{\gamma}) = \frac{(2 S_{b}+1) m_{b}}{\hbar^{2}} \int_{E_{\gamma}-(B_{b}+B_{x})}^{E_{b}\max} \omega_{R}(E_{b}\max - E_{b}) dE_{b}$$
(5)

 $(B_b + B_x) =$  Bindungsenergie von *b* plus Bindungsenergie des am lockersten im Restkern gebundenen Neutrons *x*. Für ein Bremsspektrum  $N(E_{\gamma})$  erhält man nun das mit dem Experiment zu vergleichende Verhältnis  $\eta$  der nuklearen Ausbeuten durch Integration:

$$\eta = \frac{a(\gamma, \alpha)}{a(\gamma, n)} = \frac{\int \sigma(\gamma, \alpha) N(E_{\gamma}) dE_{\gamma}}{\int \sigma(\gamma, n) N(E_{\gamma}) dE_{\gamma}} = \frac{\sum_{\gamma \text{ Grenz}} \int \sigma(\gamma, n) (E_{\gamma}) \frac{f_{\alpha}^{*}(E_{\gamma} - B_{\alpha})}{f_{n}^{*}(E_{\gamma} - B_{n})} N(E_{\gamma}) dE_{\gamma}}{\int \sigma(\gamma, n) (E_{\gamma}) \cdot N(E_{\gamma}) dE_{\gamma}}.$$
 (6)

Die in Gleichung (6) auftretenden Funktionen  $\sigma_{(\gamma, n)}(E_{\gamma})$  und  $N(E_{\gamma})$ sind dem Experiment zu entnehmen, die statistische Theorie trägt lediglich das Verhältnis

$$\left[\frac{\sigma(\gamma,\alpha)}{\sigma(\gamma,n)}\right]_{\text{theor}} = \frac{f_{\alpha}^{*}}{f_{n}^{*}}$$

zum ganzen Ausdruck bei. Nun hat in demjenigen Energiebereich, welcher den Hauptbeitrag zum  $(\gamma, \alpha)$ -Prozess liefert, der  $(\gamma, n)$ -Prozess sein Maximum überschritten und ist bereits nahezu auf Null gesunken (s. dazu Fig. 5). Die Bestimmung von  $\sigma$  ( $\gamma$ , n) aus integralen Ausbeutemessungen ist deshalb in diesem Energiegebiet notwendigerweise mit einem grossen relativen Fehler behaftet, welcher sich voll auf  $\sigma(\gamma, \alpha)$  überträgt. Diese Schwierigkeit lässt sich bei Benützung der totalen Neutronenausbeute an Stelle von Aktivitätsmessungen weitgehend vermeiden. Aus der totalen Neutronenausbeute lässt sich nämlich, wie noch gezeigt werden soll, unter Anwendung der statistischen Theorie sowohl  $\sigma(\gamma, nx)$  wie auch  $\sigma(\gamma, n)$ berechnen. Der für die totale Neutronenausbeute massgebende Querschnitt  $\sigma_{tot}$  ist im Gegensatz zu  $\sigma(\gamma, n)$  in der Umgebung des Maximums von  $\sigma(\gamma, \alpha)$  noch nicht stark unter seinen Maximalwert gesunken. Er ist deshalb im Vergleich zu  $\sigma(\gamma, n)$ , bei annähernd gleichem Absolutfehler, mit einem bedeutend kleineren relativen Fehler behaftet. Die aus  $\sigma_{tot}$  mit der statistischen Theorie berechneten Querschnitte  $\sigma(\gamma, nx)$  und  $\sigma(\gamma, n)$  erhalten damit, was den Anteil der Messgenauigkeit anbelangt, ebenfalls einen entsprechend kleinen relativen Fehler. Wenn Messungen der totalen Neutronenausbeute vorliegen, so wird man zweckmässigerweise mit  $\sigma(\gamma, nx)$ arbeiten, da sich der Gang der Rechnung dadurch direkter gestaltet. Verfügt man sowohl über Neutronen- wie auch Aktivitätsmessungen, so lässt sich bei schweren Elementen  $\sigma(\gamma, nx)$  in guter Näherung ohne jegliche Bezugnahme auf die Theorie bestimmen (s. hierzu 4. In<sup>115</sup>). Bei Verwendung von  $\sigma(\gamma, nx)$  an Stelle von  $\sigma(\gamma, n)$  modifiziert sich der Zähler von Gleichung (6) entsprechend der Formel

$$\int_{B_{\alpha}}^{E_{\gamma} \operatorname{Grenz}} \sigma_{(\gamma, n x)} \left( E_{\gamma} \right) \frac{f_{\alpha}^{*} \left( E_{\gamma} - B_{\alpha} \right)}{f_{n} \left( E_{\gamma} - B_{n} \right)} N(E_{\gamma}) dE_{\gamma}.$$
(6a)

Der Nenner von (6), welcher unverändert bleibt, ist natürlich weitgehend unempfindlich auf den relativen Fehler von  $\sigma(\gamma, n)$  bei hohen Energien, so dass hier die Ungenauigkeiten der integralen Ausbeutemessung keine merkliche Fehlerquelle mehr bedingen.

Die Anwendung des durch die Gleichung (6) und (6a) festgelegten Verfahrens setzt voraus, dass die statistische Theorie die unter Neutronenemission ablaufenden Photoprozesse richtig wiedergibt. Das ist auch tatsächlich weitgehend der Fall, wie aus verschiedenen Experimenten, u. a. insbesondere Messungen über das Verhältnis  $\sigma(\gamma, n)/\sigma(\gamma, 2n)$  in Abhängigkeit von der Quantenenergie, auf das es hier massgebend ankommt, hervorgeht. Die durch  $\sigma_{(\gamma, n)}(E_{\gamma})$ gegebene Energieabhängigkeit des  $(\gamma, n)$ -Querschnittes braucht üb-

15

rigens lediglich ihrer Form nach bekannt zu sein, da sich konstante Faktoren in Gleichung (6) herausheben. Das Frequenzspektrum  $N(E_{\gamma})$  des Betatrons wurde von uns in dem in Frage kommenden Energiebereich (10—31 MeV) im Rahmen einer besonderen Untersuchung ausgemessen. Die Messung ergab eine sehr gute Übereinstimmung mit der von Schiff<sup>5</sup>) berechneten Verteilung (s. Fig. 2).



Energiespektrum der Betatron-Bremsstrahlung. — gemessene Energieverteilung, ---- theoretische Kurve nach Schiff (loc. cit.).

Daraufhin wurde der vorliegenden Auswertung durchwegs das Schiffsche Spektrum zugrundegelegt. Für die Anregungskurven der induzierten Aktivität sowie auch die totalen Neutronenausbeuten konnten in den meisten Fällen bereits vorliegende Messungen anderer Autoren benützt werden. Zwei weitere in die Rechnung eingehende, sehr kritische Grössen sind die Bindungsenergien  $B_n$ ,  $B_{\alpha}$ für ein Neutron bzw. Alphateilchen des Ausgangskerns. Für die Neutronenbindungsenergien  $B_n$  liegen experimentelle Werte vor, welche sich aus den extrapolierten Schwellenwerten der Anregungskurven für die  $(\gamma, n)$ -Prozesse ergeben. Diese sind für die hier untersuchten Kerne in Tabelle 1 zusammengestellt. Den auf diese Weise bestimmten Bindungsenergien liegen zur Hauptsache die Arbeiten von Sher, Halpern und Mann<sup>6</sup>) zugrunde. Zur Bestimmung der Alphabindungsenergien  $B_{\alpha}$  existieren hingegen keine direkten Messungen. Wir haben diese Werte deshalb ursprünglich mit Hilfe der Massenformel\*) berechnet. In einer neueren Arbeit von WAPSTRA und HUIZENGA<sup>7</sup>) werden die Bindungsenergien nahezu aller Kerne

<sup>\*)</sup> Vgl. z. B.: E. FERMI, Nuclear Physics, University of Chicago Press (1950).

durch Kombination von massenspektrographischen Daten mit Energietönungen von Kernreaktionen berechnet. In Tabelle 1 sind die nach beiden Verfahren ermittelten Alphabindungsenergien zusammengestellt.

#### Tabelle 1.

Verwendete	Neutroner	nbindunasene	eraien B.	(in A	AeV).
1 01 00 00000	11 00001 01001	contra any cont	good Dn	1010 2	101 1.

V <sup>51</sup>	Cu <sup>65</sup>	Ge <sup>73</sup>	Br <sup>81</sup>	Rb <sup>87</sup>	Ag109	In <sup>115</sup>	Sb121	Tl <sup>203</sup>
11,1	9,8	6,6	9,9	9,9	9,1	9,1	9,3	8,8

#### Tabelle 2.

Alphabindungsenergien  $B_{\alpha}$  (in MeV). (In der untersten Zeile sind die mittleren Fehler angegeben.)

*	V <sup>51</sup>		Cu <sup>65</sup>	Ge	73	Br <sup>81</sup>		Rb <sup>87</sup>
Massenformel WAPSTRA und HUIZENGA	7,3 10,32 $\pm$ 0,2	6,	6,1 ,30±0,3	5 5,55	,8 ±0,3	$5,4$ $6,42\pm$	0,3	$5,4 \\ 7,82 \pm 0,3$
1 <u>1</u>	Ag <sup>109</sup>	2	In <sup>1</sup>	In <sup>115</sup>		Sb <sup>121</sup>		Tl <sup>203</sup>
Massenformel WAPSTRA und HUIZENGA	$2,7 \\ 3,0\pm0,7$	$\begin{array}{c c} 2,7 & 2,5 \\ \pm 0,7 & 3,68 \pm 0 \end{array}$		5 <u>-</u> 0,7	3,4	$2,4$ $2\pm0,7$	-	-2,6 $-0,97\pm3,0$

Im Falle des V<sup>51</sup> stimmt der Wert  $B_{\alpha} = 10,32$  MeV mit dem aus den empirischen Atommassen berechneten (10,4 MeV) überein. Wir haben deshalb der Auswertung diesen Wert zugrunde gelegt. Für Tl<sup>203</sup> ist der von WAPSTRA und HUIZENGA berechnete Wert gegenstandslos, da der angegebene mittlere Fehler sowohl den nach der Massenformel berechneten, als auch den durch Extrapolation der  $\alpha$ -Zerfallsreihen erhaltenen Wert für  $B_{\alpha}$  enthält. Da Thallium keinen nachweisbaren Alpha-Zerfall erleidet, so kann man annehmen, dass Tl<sup>203</sup> aktiv mit einer Halbwertszeit von mehr als  $\approx 10^{12}$ a ist, da das etwa der Grenze der experimentellen Nachweisbarkeit entspricht. Die Geiger-Nuttalsche Beziehung liefert für diese Halbwertszeit eine Bindungsenergie von  $B_{\alpha} = -3$  MeV. Dieser Wert stellt also eine untere Grenze von  $B_{\alpha}$  dar.

Um den Einfluss des Parameters  $B_{\alpha}$  deutlich hervortreten zu lassen, wurde im folgenden das nukleare Ausbeuteverhältnis  $a(\gamma, \alpha)/a(\gamma, n)$  für verschiedene angenommene Werte von  $B_{\alpha}$  berechnet und mit dem Experiment verglichen. Im weiteren wurden zur Berechnung der Funktionen  $f^*$  die von WEISSKOPF und BLATT<sup>8</sup>) zusammengestellten Einfangquerschnitte für Alphateilchen bzw. Neutronen benützt. (Kernradius  $R = r_0 \cdot A^{1/3}$ ,  $r_0 = 1, 4 \cdot 10^{-13}$  cm). Der ebenfalls in  $f^*$  eingehenden Niveaudichte des Restkerns wurde die Formel

$$\omega_R(E) = C(A) \exp\left(2\sqrt{a(A) \cdot E}\right) \tag{7}$$

mit dem in Fig. 3 dargestellten Verlauf von a(A) zugrunde gelegt. Man erhält Gleichung (7), indem man den Logarithmus der Niveaudichte als Entropie des Kernsystems auffasst und für die Anregungsenergie E eine quadratische Abhängigkeit von der "Kerntemperatur" annimmt. Die Konstanten C(A) und a(A) sind dem vorhandenen empirischen Material angepasst, wobei allerdings für ihre endgültige Wahl noch ein grosser Spielraum frei bleibt. Im vorliegenden



Parameter a(A) der Niveaudichte-Formel Gleichung (7) in Abhängigkeit vom Atomgewicht A.

Fall hängt das endgültige Ergebnis der Rechnung praktisch überhaupt nicht vom Parameter C(A) ab. Auch auf Änderungen im Werte von a(A) ist das Resultat nicht sehr empfindlich, wie im folgenden noch gezeigt werden soll. Das rührt daher, dass nur das *Verhältnis* der Funktionen,  $f_{\alpha}/f_n$ , in die Rechnung eingeht. Ferner ist noch zu bemerken, dass der Eigenschaft des Restkerns, geradzahlig oder ungeradzahlig in der Neutronen- bzw. Protonenzahl zu sein, in Gleichung (7) in roher Weise Rechnung getragen wurde: die Niveaudichte erhält zusätzlich einen Faktor  $\varkappa$ , wenn der Restkern vom Typus (u, u), bzw.  $1/\varkappa$ , wenn er vom Typus (g, g) ist. (Im Falle (u, g), (g, u) ist keine Korrektur anzubringen.) Bei der Bestimmung der theoretischen Wirkungsquerschnitte wurde durchwegs mit  $\varkappa = 2$ gerechnet. Bei den vorliegenden Kernen liegen die Verhältnisse so, dass für Ge<sup>73</sup>  $\varkappa$  im Endresultat linear in den Zähler, in allen übrigen Fällen dagegen linear in den Nenner eingeht.

15

Eine weitere, nicht ganz selbstverständliche Voraussetzung der Rechnung ist die folgende: Die im Photoprozess ausgelösten Alphateilchen werden gleich behandelt wie Nukleonen, d. h. die Alphateilchen werden im Kern als *präformiert* angenommen.

Nachstehend sind die mit der statistischen Theorie erhaltenen Ergebnisse für jeden der untersuchten Kerne gesondert zusammengestellt und besprochen. Je nach der Zweckmässigkeit und dem Vorliegen von empirischem Material wurden für die Berechnung der Ausdrücke (6) bzw. (6a) entweder Messungen der im ( $\gamma$ , n)-Prozess induzierten Aktivität oder Bestimmungen der totalen Neutronenausbeute benützt. In einigen Fällen standen sowohl Aktivitäts- wie auch Neutronenmessungen zur Verfügung. Diese konnten zu einer Prüfung der Konsistenz des ganzen Auswerteverfahrens benützt werden. Das gilt insbesondere für das Isotop Sb<sup>121</sup>, welches von uns deshalb eingehend untersucht wurde, und für welches wir auch die Rechnung unter mehreren verschiedenen Annahmen durchgeführt haben. Aus diesem Grunde sollen die Auswertungen für Sb<sup>121</sup> im folgenden an erster Stelle diskutiert werden.

#### 1. Sb<sup>121</sup>.

Die verschiedenen Parameter, welche in die Gleichung (6) eingehen, lassen sich beim gegenwärtigen Stand unserer Kenntnisse nur



Die theoretischen Funktionen  $f_n^*$ ,  $f_{\alpha}^*$  für Sb<sup>121</sup>. Die der Kurvenschar  $f_{\alpha}^*$  beigefügten Zahlen bedeuten  $r_0$  (in 10<sup>-13</sup> cm)/ $B_{\alpha}$ (MeV). Die Kurven  $f_n^*$  sind für  $B_n = 9,2$  MeV gerechnet.

innerhalb gewisser Grenzen fixieren. Ihr Einfluss auf das Endergebnis und damit auch die Brauchbarkeit des für den Vergleich mit dem Experiment eingeschlagenen Verfahrens wurde an diesem Kern eingehend untersucht. Fig. 4 zeigt die theoretischen Funktionen  $f_n^*$  und  $f_{\alpha}^*$ , letztere für drei verschiedene Annahmen über die Alphabindungsenergie:  $B_{\alpha} = 2$ , 3, 4 MeV und zwei verschiedene Werte von  $r_0: r_0 =$ 1,3 und 1.5 (in der Einheit 10<sup>-13</sup> cm). Fig. 5 enthält die einzelnen



Faktoren des Integranden von Gleichung (6) für Sb<sup>121</sup>. (a) Schiffspektrum  $N(E_{\nu})$ .

(b)  $\sigma(\gamma, n)$  — Aktivitätsmessung, … aus der totalen Neutronenausbeute berechnet, – – Variation der gemessenen integralen ( $\gamma, n$ )-Ausbeute, gemäss Fig. 6; ( $c_2$ ) ( $c_3$ ) ( $c_4$ ) theoretische Funktionen  $f_{\alpha}^*/f_n^*$  für  $B_{\alpha}^* = 2, 3, 4$  MeV.

 $(d_2)$   $(d_3)$   $(d_4)$  Integrand von Gleichung (6) für  $B_{\alpha} = 2, 3, 4$  MeV.

— Aktivitätsmessung  $(\gamma, n)$ .

--- Variation der gemessenen integralen ( $\gamma$ , n)-Ausbeute gemäss Fig. 6.

Faktoren, aus denen sich der Integrand im Zähler der Gleichung (6) zusammensetzt, in Abhängigkeit von der Quantenenergie  $E_{\gamma}$ . Die Kurven *a*, *b*, *c* stellen dar: (*a*) das Schiffspektrum N(E), (*b*) den  $(\gamma, n)$ -Querschnitt  $\sigma_{(\gamma, n)}(E_{\gamma})$ , (*c*) das Verhältnis  $f_{\alpha}^*/f_n^*$ . Der Integrand im Zähler von Gleichung (6) (Kurve *d*) ist sehr empfindlich auf den Verlauf von  $\sigma_{(\gamma, n)}(E_{\gamma})$ , speziell für hohe Quantenenergien (18  $\leq E_{\gamma}$   $\leq 22$  MeV). Auf die Bestimmung des  $(\gamma, n)$ -Querschnitts wurde deshalb besondere Sorgfalt gelegt. Die Messung der Ausbeute der Reaktion Sb<sup>121</sup> $(\gamma, n)$  liefert in Abhängigkeit von der Grenzenergie des Betatrons zunächst einmal eine integrale Anregungskurve. Fig. 6 (ausgezogene Kurve) gibt die entsprechenden Messungen von KATZ und CAMERON<sup>9</sup>) wieder. Der von den genannten Autoren aus der





gemessenen Kurve berechnete Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{(\gamma, n)}(E_{\gamma})$  ist in Fig. 5 (ausgezogene Kurve b) eingezeichnet. Als zweite Methode zur Bestimmung von  $\sigma(\gamma, n)$  wurde die Messung der totalen Neutronenausbeute benützt. Der für die Gesamtzahl der emittierten Neutronen massgebende Wirkungsquerschnitt setzt sich aus den Querschnitten sämtlicher zur Neutronenproduktion beitragenden Prozesse in folgender Weise zusammen:

 $\sigma_{ ext{tot}} = \sigma(\gamma, n) + 2 \sigma(\gamma, 2 n) + \sigma(\gamma, n p) + \sigma(\gamma, n \alpha) + \cdots$ 

Daraus ergibt sich unmittelbar

$$\sigma(\gamma, n x) = \sigma_{\text{tot}} - \sigma(\gamma, 2 n).$$

Aus der statistischen Theorie lässt sich sowohl das Verhältnis

 $\sigma(\gamma, 2 n) / \sigma(\gamma, n x)$  als auch  $\sigma(\gamma, n) / \sigma(\gamma, n x)$ 

berechnen. Damit kann man aus dem gemessenen  $\sigma_{tot}$  auf  $\sigma(\gamma, n)$  und  $\sigma(\gamma, nx)$  schliessen.

Wir haben auf diese Weise für Sb<sup>121</sup> den  $(\gamma, n)$ -Querschnitt aus der von MONTALBETTI, KATZ und GOLDEMBERG<sup>10</sup>) gemessenen totalen Neutronenausbeute berechnet. Die so erhaltene, bei 17 MeV angeschlossene Kurve ist in Fig. 5 ebenfalls (punktiert) eingetragen. Die Übereinstimmung mit der aus den Aktivitätsmessungen direkt gewonnenen Kurve ist hier ausgezeichnet.

Um ferner einen Anhaltspunkt über den Einfluss allfälliger Messfehler auf das Endresultat zu erhalten, haben wir die mit der Akti-



Verhältnis der nuklearen Ausbeuten.

 $\eta = a(\gamma, \alpha)/a(\gamma, n)$  für Sb<sup>121</sup>. [Variante in  $\sigma(\gamma, n)$ ]: Kurve basiert auf erhöhter integraler Ausbeute gemäss Fig. 6. (exp.): Kurve basiert auf Aktivitätsmessung bzw. totaler Neutronenausbeute. (exp. mit a = 3,4): Kurve basiert auf a(A) = 3,4anstatt 6,8 wie bei allen übrigen Kurven.

vitätsmessung erhaltene Ausbeutekurve im obersten Teil ( $E_{\text{Grenz}} > 17 \text{ MeV}$ ) etwas abgeändert (s. gestrichelte Kurve, Fig. 6) und mit dieser Kurve den Verlauf des ( $\gamma$ , n)-Querschnittsnochmals bestimmt. Die variierte Kurve wurde so gewählt, dass sie innerhalb eines mittleren Fehlers von 1% der ursprünglichen Messkurve zu liegen kam, was etwa der oberen Grenze der Genauigkeit solcher Messungen entspricht. Das Resultat dieser Variation ist in den Fig. 5 und 7 (gestrichelt) eingezeichnet. Die Fig. 7 zeigt, als Endergebnis der Rechnung, das Verhältnis  $\eta$ , d. i. die durch Integration über das Schiffspektrum erhaltene nukleare Ausbeute für den ( $\gamma$ ,  $\alpha$ )-Prozess,  $a(\gamma, \alpha)$ , dividiert durch  $a(\gamma, n)$ .  $\eta$  ist in Funktion der Alphabindungsenergie  $B_{\alpha}$  sowohl für die Werte  $r_0 = 1,3$  und 1,5 (in der Einheit  $10^{-13}$  cm) als auch für die verschiedenen Kurven (b), welche den Verlauf von  $\sigma(\gamma, n)$  wiedergeben, aufgetragen. Auch der Einfluss einer Halbierung der Konstanten a(A) in der Formel (7) für die Niveaudichte  $\omega_R$  ist in der Figur noch angedeutet. Wie diese Darstellung zeigt, ist durch die Unsicherheit der in die Rechnung eingehenden Parameter einerseits und die Messgenauigkeit der dem Experiment entnommenen Anregungskurven andererseits der Spielraum, innerhalb dessen sich der Quotient  $\eta$  bei Gültigkeit der statistischen Theorie noch bewegen kann, durch rund einen Faktor 60 gegeben. Der experimentelle Wert  $\eta_{exp}$  liegt für Sb<sup>121</sup> noch knapp innerhalb dieses Spielraums.

Wie im folgenden noch gezeigt werden soll, besteht das Hauptergebnis der vorliegenden Arbeit im Nachweis, dass auch in allen andern untersuchten Fällen der experimentell gefundene Wert  $\eta_{exp}$  sich innerhalb der gleichen, durch die Theorie bedingten, ein bis zwei Grössenordnungen umfassenden Schranken bewegt.

# 2. V<sup>51</sup>.

An V<sup>51</sup> wurde die totale Neutronenausbeute von GOLDEMBERG und KATZ<sup>11</sup>) für Quantenenergien zwischen 12 und 24 MeV gemessen. Daraus lässt sich der entsprechende Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{tot}$  wie unter 1. bestimmen. Aus der Theorie haben wir ferner das Verhältnis  $\sigma(\gamma, 2n)/\sigma(\gamma, nx)$  entnommen und damit den Querschnitt  $\sigma(\gamma, nx)$  berechnet. Mit diesem  $\sigma(\gamma, nx)$  sowie der theoretischen Funktion

$$\frac{f_{\alpha}^{*}(E_{\gamma}-B_{\alpha})}{f_{n}(E_{\gamma}-B_{n})} = \left[\frac{\sigma(\gamma,\alpha)}{\sigma(\gamma,nx)}\right]_{\text{th}}$$

erhält man den gewünschten theoretischen Wert von  $\sigma(\gamma, \alpha)$  allein:

$$\sigma(\gamma, \alpha)_{\rm th} = \sigma(\gamma, nx) \left[ \sigma(\gamma, \alpha) / \sigma(\gamma, nx) \right]_{\rm th}.$$

Durch Integration über das Bremsspektrum ergibt sich weiter die nukleare Ausbeute

$$a_{\mathrm{V}^{51}}(\gamma, \alpha)_{\mathrm{th}} = \int_{0}^{31 \,\mathrm{MeV}} N(E_{\gamma}) \, \sigma(\gamma, \alpha)_{\mathrm{th}} \, dE_{\gamma}.$$

In gleicher Weise lässt sich aus dem der Literatur entnommenen, experimentell sehr gut bekannten Verlauf des  $(\gamma, n)$ -Querschnittes für Kupfer durch Integration über das Spektrum die entsprechende nukleare Ausbeute  $a^{Cu^{es}}(\gamma, n)$  berechnen. In Fig. 8 ist das Verhältnis  $[a^{V^{s_1}}(\gamma, a)_{th}/a^{Cu^{es}}(\gamma, n)]$  in Funktion des Parameters  $B_{\alpha}$  aufgetragen. Das direkt dem Experiment entnommene Verhältnis wird durch die horizontale Gerade dargestellt. Wie man aus der Figur ersieht, übertrifft das experimentell bestimmte nukleare Ausbeuteverhältnis das theoretische um den Faktor 2, 5.



Nukleare Ausbeute der  $(\gamma, \alpha)$ -Reaktion an V<sup>51</sup> in Abhängigkeit von  $B_{\alpha}$ . Als Einheit dient die im Prozess Cu<sup>63</sup> $(\gamma, n)$  gemessene nukleare Ausbeute. Die gestrichelten Vertikalen bedeuten den von WAPSTRA (loc. cit.) angegebenen mittleren Fehler.

#### 3. Ge<sup>73</sup>.

Da der  $(\gamma, n)$ -Prozess an diesem Isotop auf einen stabilen Kern führt, ist es nicht möglich, den Verlauf des  $(\gamma, n)$ -Querschnitts durch Aktivitätsmessungen zu ermitteln. Messungen der totalen Neutronenausbeute liegen ebenfalls keine vor. Im Hinblick auf den kleinen Anteil des Isotops Ge<sup>73</sup>(~8%) am natürlichen Isotopengemisch dieses Elements wären sie für unsern Zweck auch nicht sehr brauchbar. Das nächstgelegene Nachbarisotop, welches auf eine bequem messbare  $(\gamma, n)$ -Aktivität führt, ist Ge<sup>76</sup>. Dieses unterscheidet sich von Ge<sup>73</sup> um 3 Neutronen, besitzt dementsprechend eine um rund 3 MeV höhere Bindungsenergie und dürfte einen von Ge<sup>73</sup> stark verschiedenen Verlauf im Querschnitt  $\sigma_{(\gamma, n)}(E_{\gamma})$  aufweisen. Es erschien uns deshalb am zweckmässigsten, zwischen den experimentell bekannten totalen Neutronenausbeuten ( $\sigma_{tot}$ ) der Nachbarelemente Cu, Zn und As zu interpolieren und aus der so

gewonnenen Interpolationskurve für  $\sigma_{tot}(Ge)$  mit Hilfe der statistischen Theorie (analog wie bei V<sup>51</sup>)  $\sigma(\gamma, nx)$  und daraus  $\sigma(\gamma, \alpha)_{th}$ zu berechnen. Fig. 9 zeigt die in dieser Weise gewonnene Kurve für



Photonuklearer Querschnitt  $\sigma(\gamma, nx)$  für Neutronenemission einschliesslich allfällig nachfolgender Teilchen für Ge<sup>73</sup> (aus Nachbarelementen interpoliert).





Nukleare Ausbeute der  $(\gamma, \alpha)$ -Reaktion an Ge<sup>73</sup> in Abhängigkeit von  $B_{\alpha}$ . Als Einheit dient die im Prozess Cu<sup>63</sup>  $(\gamma, n)$  gemessene Ausbeute. Die gestrichelten Vertikalen bedeuten den von WAPSTRA (loc. cit.) angegebenen mittleren Fehler.

 $\sigma_{(\gamma, nx)}(E_{\gamma})$  und Fig. 10 die relativ zu Cu<sup>63</sup> genommene nukleare Ausbeute. Die Diskrepanz zwischen Theorie und Experiment bewegt sich hier um einen Faktor 3 herum.

# 4. In<sup>115</sup>.

Der experimentelle Verlauf des  $(\gamma, n)$ -Querschnitts wurde für dieses Isotop von GOLDEMBERG und KATZ<sup>12</sup>) durch Aktivitätsmessungen erhalten. Er ist in Fig. 11 (ausgezogene Kurve) dargestellt. Daneben existieren auch noch Messungen der totalen Neutronenausbeute<sup>10</sup>), aus denen der in der Figur ebenfalls (punktiert) eingezeichnete Querschnitt  $\sigma_{tot}$  folgt. Der unter ausschliesslicher



Photonukleare Querschnitte für In<sup>115</sup>.

- $--- \sigma(\gamma, n)$ , experimenteller  $(\gamma, n)$ -Querschnitt.
- .....  $\sigma_{tot}$ , für die experimentelle totale Neutronenausbeute massgebender Querschnitt.
- $-\cdots -\cdot$  Mittelwert aus  $\sigma(\gamma, n)$  und  $\sigma_{\text{tot}}$ .
- $---\sigma_{\text{ber}}(\gamma, nx)$ , aus  $\sigma_{\text{tot}}$  mittelst der statistischen Theorie berechneter Querschnitt  $\sigma(\gamma, nx)$ .

Verwendung der experimentellen Kurve für  $\sigma_{tot}$  nach der statistischen Theorie berechnete Wirkungsquerschnitt  $\sigma(\gamma, nx)$  ist in der Figur gestrichelt angegeben.

Bei einem schweren Element wie Indium verhindert der Coulombwall den Austritt geladener Teilchen in so hohem Masse, dass die Beiträge  $\sigma(\gamma, np) + \sigma(\gamma, pn) + \dots$  zu  $\sigma_{tot}$  vernachlässigt werden dürfen. (Die nach der statistischen Theorie berechnete Summe dieser Querschnitte beträgt weniger als  $1^{0}/_{00}$  von  $\sigma_{tot}$ ). In dieser Näherung ergibt sich nun  $\sigma(\gamma, nx)$ , ohne jede Bezugnahme auf die

Theorie, einfach aus der Summe der experimentellen Grössen  $\sigma(\gamma, n)$ und  $\sigma_{tot}$ 

$$\sigma(\gamma, nx) \simeq rac{1}{2} [\sigma(\gamma, n) + \sigma_{ ext{tot}}].$$

Dieser in der Figur strichpunktiert angedeutete Querschnitt führt für die gesuchte Grösse

$$\sigma(\gamma, \alpha)_{ ext{theor}} = \sigma(\gamma, nx) \, rac{f_{lpha}^{*}(E_{\gamma} - B_{lpha})}{f_{n}(E_{\gamma} - B_{n})}$$

auf ein Resultat, welches eine um 15% grössere  $(\gamma, \alpha)$ -Ausbeute liefert als die erstbeschriebene Methode. Dem in Fig. 12 aufgetragenen



Verhältnis der nuklearen Ausbeuten  $\eta = a(\gamma, \alpha)/a(\gamma, n)$  in Abhängigkeit von  $B_{\alpha}$  für In<sup>115</sup>.

Verhältnis  $\eta = a(\gamma, \alpha)_{\text{theor}}/a(\gamma, n)_{\text{exp}}$  ist der Mittelwert der beiden Resultate zugrunde gelegt. Der ebenfalls eingezeichnete experimentelle Wert für  $\eta$  ist je nachdem, ob man den mit der Massenformel berechneten oder den der Arbeit von WAPSTRA und HUIZINGA (loc. cit.) entnommenen Wert für  $B_{\alpha}$  zugrunde legt, gegenüber dem theoretischen um einen Faktor 2,6 zu klein, bzw. 1,9 zu gross.

# 5. Tl<sup>203</sup>.

Bei Thallium erweist es sich als zweckmässig, ausschliesslich von der totalen Neutronenausbeute und dem zugehörigen Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{tot}$  auszugehen und daraus nach der statistischen Theorie  $\sigma(\gamma, nx)$  zu berechnen. Bei den schweren Elementen ist nämlich, wie bereits erwähnt, in dem für den  $(\gamma, \alpha)$ -Prozess massgebenden Energiegebiet der  $(\gamma, n)$ -Prozess praktisch vollständig abgeklungen und durch die  $(\gamma, 2 n)$ -Reaktion ersetzt worden. Infolgedessen führen bereits minime Messfehler in der integralen  $(\gamma, n)$ -Ausbeute zu erheblichen relativen Fehlern für den daraus berechneten, nahezu auf Null gesunkenen Wirkungsquerschnitt. Messungen der totalen Neutronenausbeute liegen für die Elemente Au, Pb und Bi vor<sup>10</sup>), die Messergebnisse (ausgezogene Kurve,  $\sigma_{tot}$ ) sind in Fig. 13 wiedergegeben. In der



Fig. 13.

---- Aus Messungen der totalen Neutronenausbeute bestimmte Wirkungsquerschnitte  $\sigma_{tot}$  für Au, Pb, Bi.

..... Aus  $\sigma_{tot}$  mit der statistischen Theorie berechnete Querschnitte  $\sigma(\gamma, nx)$ .

Figur sind die Kurven für  $\sigma_{tot}$  einander in der Höhe des Maximums angeglichen: berechnet man nämlich aus den ursprünglichen Kurven unter Anwendung der statistischen Theorie die zugehörigen Querschnitte  $\sigma(\gamma, nx)$ , so erhält man für dieselben, entsprechend der Abhängigkeit der totalen Neutronenausbeute von der Massenzahl, Kurven mit etwas verschiedener Höhe. Ihre Halbwertsbreiten dagegen erweisen sich als praktisch gleich. Dieser empirische Befund erlaubt, die Querschnitte  $\sigma(\gamma, nx)$  der in Frage stehenden Elemente in erster Näherung als nur um konstante Faktoren verschieden anzusetzen. Da solche konstante Faktoren bei der Berechnung von  $\eta$  gemäss Gleichung (6), (6a) herausfallen, so ist die in Fig. 13 angewandte Normierung gerechtfertigt. Die in dieser Weise normierten Kurven für  $\sigma(\gamma, nx)$  (punktiert) zeigen einen nahezu übereinstimmenden Verlauf. Die durch Mittelwertbildung derselben gewonnene, als zweite Näherung anzusprechende Kurve wurde dem Thallium zugeordnet. Da für Thallium keine experimentellen  $(\gamma, n)$ -Anregungskurven vorliegen, wurde aus der auf diese Weise bestimmten Funktion  $\sigma_{(\gamma, nx)}(E_{\gamma})$  mit der statistischen Theorie weiterhin das zur Auswertung des Nenners in Gleichung (6) benötigte  $\sigma(\gamma, n)$  berechnet. In Fig. 14 ist das theoretische nukleare Ausbeuteverhältnis  $\eta$  in Abhängigkeit von  $B_{\alpha}$  zusammen mit dem experimentellen Wert aufgetragen.



Verhältnis der nuklearen Ausbeuten  $\eta = a(\gamma, \alpha)/a(\gamma, n)$  in Abhängigkeit von  $B_{\alpha}$  für Tl<sup>203</sup>. Der Pfeil bei  $B_{\alpha} = -3$  MeV bezeichnet die Grenze der Nachweisbarkeit des  $\alpha$ -Zerfalls.

Bei Thallium musste erstmals berücksichtigt werden, dass die Niveaubreite  $\Gamma_{\gamma}$  für  $\gamma$ -Emission auch oberhalb der Schwellenenergie für Neutronenemission die Neutronenbreite  $\Gamma_n$  übertrifft. Das wirkt sich als "scheinbare" Erhöhung der Neutronenschwelle um etwa 1 MeV aus und erhöht das Endresultat für  $\eta$  gegenüber einer Rechnung, welche diesen Effekt vernachlässigt, um 20%. Die Unsicherheit in der Fixierung von  $B_{\alpha}$  erschwert in diesem Fall den Vergleich. Doch auch bei diesem schweren Kern stimmen Rechnung und Experiment in der Grössenordnung überein.

#### IV. Auswertung der Messungen anderer Autoren.

Wie bereits (unter I.) erwähnt wurde, liegen für Cu<sup>65</sup>, Br<sup>81</sup>, Rb<sup>87</sup> und Ag<sup>109</sup> differentielle Anregungskurven für den ( $\gamma$ ,  $\alpha$ )-Prozess vor. Die entsprechenden theoretischen Kurven stellen bis auf den Faktor  $N(E_{\gamma})$  den Integranden des Zählers in Gleichung (6) dar. Sie lassen sich bei Kenntnis von  $\sigma(\gamma, n)$  oder  $\sigma_{tot}$ , wie unter III. ausgeführt, aus der statistischen Theorie berechnen. Die Fig. 15 bis 19 zeigen sowohl die der Literatur (loc. cit.) entnommenen experimentellen als auch die berechneten Kurven. Den letzteren liegen die der Arbeit von WAPSTRA entnommenen Werte für die Bindungsenergien  $B_{\alpha}$  (Tabelle 2) zugrunde. Einer Diskussion dieser Resultate ist vorauszuschicken, dass die Form dieser Kurven äusserst



Experimenteller (exp) und theoretischer (theor) ( $\gamma$ ,  $\alpha$ )-Querschnitt für Cu<sup>65</sup>.

empfindlich auf jede Variation im Verlauf der nur integral messbaren Ausbeutekurven ist. Zu den einzelnen Kernen ist folgendes zu bemerken.

# 1. Cu<sup>65</sup>.

Hier (s. Fig. 15) ist die Übereinstimmung zwischen Rechnung und Experiment sehr befriedigend, indem die Position des Maximums im Wirkungsquerschnitt eine Diskrepanz von etwa 1,5 MeV aufweist und das Maximum selbst nach der Theorie um einen Faktor 2 grösser ausfällt als die Messung. Der für die Rechnung benötigte  $(\gamma, n)$ -Querschnitt wurde den Messungen von KATZ und CAMERON<sup>9</sup>) entnommen.

# 2. Br<sup>81</sup>.

Die ursprünglich von KATZ und Mitarbeitern<sup>13</sup>) gemessene  $(\gamma, n)$ -Ausbeute liefert einen viel zu grossen theoretischen Wirkungsquerschnitt für den  $(\gamma, \alpha)$ -Prozess. Da die von diesen Autoren publizierte Kurve für  $\sigma_{(\gamma, n)}$   $(E_{\gamma})$  gegen hohe Quantenenergien hin wesentlich



Experimenteller  $(\gamma, n)$ -Querschnitt für Br<sup>§1</sup>. Die Kurve stellt die Summe aus den Partialquerschnitten für das 4,4 hr-Isomer und den 17 min-Grundzustand dar: ----  $(\alpha)$  nach KATZ u. a. (loc. cit.).

----- (b) nach eigenen Messungen.



Experimenteller (exp) und theoretischer (theor) ( $\gamma$ ,  $\alpha$ )-Querschnitt für Br<sup>81</sup>. Die gestrichelte Kurve beruht auf den ( $\gamma$ , n)-Messungen von KATZ u. a. (Kurve (a) von Fig. 16).

langsamer abfällt als bei den meisten anderen Kernen, so lag hier die Vermutung nahe, dass die gemessene integrale Ausbeutekurve bei hohen Grenzenergien fehlerhaft ist. Wir haben deshalb die entsprechende Messung mit dem aus Fig. 16 ersichtlichen Resultat wiederholt. Die aufgetragenen Werte entsprechen der Summe aus den Partialquerschnitten für den 17 min-Grundzustand und das 4,4 hr-Isomer. Kurve *a* ist der von KATZ und Mitarbeitern publizierte Wirkungsquerschnitt, Kurve *b* der aus unseren Messungen berechnete. In Fig. 17 sind die diesen Kurven entsprechenden theoretischen ( $\gamma$ ,  $\alpha$ )-Querschnitte zusammen mit der experimentellen Kurve aufgetragen. Der auf der rektifizierten Messung basierende theoretische ( $\gamma$ ,  $\alpha$ )-Querschnitt ist jetzt im Maximum noch viermal grösser als der experimentelle, und die Lage der Maxima ist um 0,5 MeV gegeneinander verschoben.

# 3. Rb87.

Der für die theoretische Rechnung benötigte experimentelle Verlauf des  $(\gamma, n)$ -Querschnitts wurde in dem für den  $(\gamma, \alpha)$ -Prozess empfindlichen Energiebereich, d. h. oberhalb des Maximums im  $(\gamma, n)$ -Querschnitt, durch eigene Messungen ermittelt. Fig. 18,



- (a) experimenteller  $(\gamma, n)$ -Querschnitt.
- (b) theoretischer, unter Benützung von (a) berechneter ( $\gamma$ ,  $\alpha$ )-Querschnitt.
- (c) experimenteller  $(\gamma, \alpha)$ -Querschnitt.

Kurve (a), zeigt den aus der experimentellen Ausbeutekurve bestimmten Verlauf von  $\sigma_{(\gamma, n)} (E_{\gamma})$ . Die Kurve ist im Maximum an die Messung von KATZ, BAKER und MONTALBETTI<sup>14</sup>) (punktiert) angeschlossen. Kurve (b) stellt den mit (a) berechneten theoretischen Verlauf für  $\sigma(\gamma, \alpha)$  dar und Kurve (c) schliesslich den von HASLAM u. a. (loc. cit.) gemessenen  $(\gamma, \alpha)$ -Querschnitt. Die einander entsprechenden Kurven (b) und (c) weichen nur unwesentlich voneinander ab. Da bei Rubidium das Maximum der experimentellen Kurve für  $\sigma(\gamma, \alpha)$  um rund 2 MeV höher liegt als bei den übrigen gemessenen Kernen, so werden hier an die Messungen der  $(\gamma, n)$ -Ausbeute besonders hohe Anforderungen gestellt. In Fig. 18 sind die Kurven nur soweit ausgezogen gezeichnet, als auf Grund der Messgenauigkeit verantwortet werden kann. Für den punktiert gezeichneten Rest könnten Abweichungen in  $\sigma(\gamma, \alpha)$  bis zu einem Faktor 2 nicht mit Sicherheit ausgeschlossen werden.

## 4. Ag<sup>109</sup>.

In Fig. 19, Kurve (a), ist der Verlauf des  $(\gamma, \alpha)$ -Querschnitts nach den Messungen von LABOULAYE und BEYDON (loc. cit.) aufgetragen.





Die Autoren führen zu dieser Messung an, dass der entsprechende theoretische Querschnitt gegenüber dem experimentellen um rund einen Faktor 1000 zu klein ausfällt. Diese Feststellung ist unzutreffend. Kurve (b) zeigt den von uns nach der statistischen Theorie berechneten Verlauf des  $(\gamma, \alpha)$ -Querschnitts für Ag<sup>109</sup>. Die Diskrepanz beträgt im Maximum weniger als einen Faktor 2. Als Unterlagen für die Rechnung standen sowohl Aktivitätsmessungen zur Bestimmung der  $(\gamma, n)$ -Ausbeute an Ag<sup>109 15</sup>), als auch Messungen der totalen Neutronenausbeute ( $\sigma_{tot}^{Ag}$ ) am natürlichen Isotopengemisch zur Verfügung<sup>12</sup>). Die Verwendung der letzteren erfordert allerdings eine Annahme über den Beitrag der einzelnen Silberisotope zu  $\sigma_{tot}^{Ag}$ . Wir haben die Rechnung unter der Voraussetzung durchgeführt, dass 1. die Kurven für den Querschnitt von  $\sigma(\gamma, nx)^{107}$ und  $\sigma(\gamma, nx)^{109}$  sich nur um einen konstanten Faktor unterscheiden und dass 2. dieser Faktor sich, wie das durch den Gang der Neutronenausbeute mit der Massenzahl nahegelegt wird, als (Verhältnis der Massenzahlen)<sup>5/3 12</sup>) bestimmt. Der mit diesen Annahmen ermittelte Wirkungsquerschnitt  $\sigma(\gamma, nx)$  (Ag<sup>109</sup>) unterscheidet sich von dem aus den Aktivitätsmessungen berechneten um maximal 20%. Die unter Verwendung des Mittelwerts aus beiden Resultaten berechnete theoretische Kurve für  $\sigma(\gamma, \alpha)$  zeigt Fig. 19 (b).

## V. Zusammenfassung und Diskussion.

Die vorliegende Untersuchung der  $(\gamma, \alpha)$ -Reaktion erstreckt sich über 9 Kerne mit Massenzahlen zwischen 51 und 203. Die Messresultate sind zusammen mit den Ergebnissen der statistischen Theorie in Tabelle 3 zusammengestellt. In der Zusammenstellung

Isotop	$\eta =$	$=\frac{a(\gamma,\alpha)}{a(\gamma,n)}$	$\frac{a(\gamma, \alpha)}{a^{(\operatorname{Cu}^{\mathfrak{s}\mathfrak{s}})}(\gamma, n)}$			
	exp.	theoret. Grenzen	exp.	theoret. Grenzen		
$V^{51}$	16		$7 \cdot 10^{-3}$	$(1-7) \cdot 10^{-3}$		
Cu <sup>65</sup>	$7,5 \cdot 10^{-3}$	$(4-35)\cdot 10^{-3}$				
Ge <sup>73</sup>			$15 \cdot 10^{-3}$	$(1,4-17)\cdot 10^{-3}$		
$Br^{81}$	$1,1 \cdot 10^{-3}$	$(1-15)\cdot 10^{-3}$				
Rb87	$2,9 \cdot 10^{-4}$	$(0,5-10) \cdot 10^{-4}$				
Ag109	$5,1 \cdot 10^{-4}$	$(0,6-22)\cdot 10^{-4}$				
In115	$1,5 \cdot 10^{-4}$	$(0,13-5) \cdot 10^{-4}$				
Sb121	$15 \cdot 10^{-5}$	$(0,2-12)\cdot 10^{-5}$				
Tl203	$23 \cdot 10^{-6}$	$(0,25-25)\cdot 10^{-6}$				

Tabelle 3.

sind auch die nuklearen Ausbeuten für die unter IV. behandelten Isotope aufgeführt. Diese wurden durch Integration des  $(\gamma, \alpha)$ -Querschnitts über das Bremsspektrum (Grenzenergie 31 MeV) berechnet. Für die theoretischen Werte ist direkt der Bereich, innerhalb dessen sich das nukleare Ausbeuteverhältnis äusserstenfalls noch bewegen dürfte, angegeben. Derselbe wurde unter der Annahme berechnet, dass die Einflüsse der Unsicherheit in den Parametern  $B_{\alpha}$ ,  $r_0$ ,  $\varkappa$  und a(A) sich in der logarithmischen Darstellung quadratisch addieren. Was die Schwankungsbreite dieser Grössen selbst anbelangt, so wurde  $B_{\alpha}$  mit dem in der Arbeit von WAPSTRA (loc. cit.) angegebenen mittleren Fehler,  $r_0 = 1.4 \pm 0.1 \cdot 10^{-13}$  cm, der gerade-ungerade-Faktor  $\varkappa$  zwischen 1 und 4, a(A) gegenüber dem durch Fig. 3 gegebenen Wert um einen Faktor 1/2 bzw. 3/2 verschieden gewählt. Der grosse Wertebereich, innerhalb dessen sich die theoretischen Ausbeuten noch bewegen können, spiegelt sowohl das notwendigerweise approximative, summarische Verfahren der statistischen Theorie als auch die Unsicherheit in den Grössen  $B_{\alpha}$  und  $r_0$  wieder. Die experimentellen Werte halten sich mit einer Ausnahme (Sb<sup>121</sup>) innerhalb der theoretischen Grenzen. Experiment und Theorie stimmen auch in der systematischen Abnahme von  $\eta$  mit der Massenzahl überein, welche von Vanadium bis zu Thallium rund einen Faktor 300 beträgt. Über diese in grossen Zügen festzustellende Übereinstimmung hinaus deutet sich bei den schwersten Kernen eine Diskrepanz an, indem die experimentellen Ausbeuten sich gegen die obere theoretische Grenze verschieben. Auf Grund des vorliegenden Materials ist es nicht möglich zu entscheiden, ob diese Diskrepanz reell ist und wenn ja, auf welche Ursache sie zurückzuführen ist. Die auftretenden Abweichungen halten sich anderseits weit unterhalb dessen, was in den als eindeutiger Widerspruch zur statistischen Theorie anerkannten Fällen, d. h. bei den  $(\gamma, p)$ - und den  $(\gamma, p)$ -Prozessen, bei denen das Experiment die Theorie um Faktoren bis zu 1000 übertrifft, beobachtet worden ist. Sie gehen auch, im Gegensatz zu diesen, nicht bei allen untersuchten Kernen in der gleichen Richtung. Dieses Ergebnis spricht dafür, dass die Beschreibung der  $(\gamma, \alpha)$ -Prozesse keinen neuen, in der statistischen Theorie nicht berücksichtigten Reaktionsmechanismus erfordert.

Da ferner die experimentellen Werte gegenüber den theoretischen keine systematische Abweichung nach unten zeigen, so scheint auch die Annahme im Kern präformierter Alphateilchen der Wirklichkeit am besten zu entsprechen.

Herrn Dr. E. SCHUMACHER, Oberassistent am Physikalisch-Chemischen Institut der Universität, sind wir für zahlreiche Ratschläge im Zusammenhang mit den auftretenden chemischen Problemen zu grossem Dank verpflichtet. Der Schweizerischen Studienkommission für Atomenergie verdanken wir die Überlassung der für diese Arbeit erforderlichen finanziellen Mittel.

#### Literatur.

- <sup>1</sup>) R. N. H. HASLAM, L. A. SMITH und J. G. V. TAYLOR, Phys. Rev. 84, 840 (1951); J. G. V. TAYLOR und R. N. H. HASLAM, Phys. Rev. 87, 1138 (1952).
- <sup>2</sup>) H. DE LABOULAYE und J. BEYDON, C. R. 239, 411 (1954).
- <sup>3</sup>) N. NABHOLZ, P. STOLL und H. WÄFFLER, Phys. Rev. 86, 1043 (1952).
- <sup>4</sup>) G. WILKINSON, Phys. Rev. 79, 1014 (1950).
- <sup>5</sup>) L. J. SCHIFF, s. G. D. ADAMS, Phys. Rev. 74, 1707 (1948).
- <sup>6</sup>) R. SHER, J. HALPERN und A. K. MANN, Phys. Rev. 84, 387 (1951).
- 7) A. H. WAPSTRA und J. R. HUIZENGA, Physica 21, 367 (1955).
- <sup>8</sup>) V. F. WEISSKOPF und J. M. BLATT, Theoretical Nuclear Physics, John Wiley (1952).
- <sup>9</sup>) L. KATZ und A. G. W. CAMERON, Can. Journ. of Phys. 29, 518 (1951).
- <sup>10</sup>) R. MONTALBETTI, L. KATZ und J. GOLDEMBERG, Phys. Rev. 91, 659 (1953).
- <sup>11</sup>) J. GOLDEMBERG und L. KATZ, Can. Journ. of Phys. 32, 49 (1954).
- <sup>12</sup>) J. GOLDEMBERG und L. KATZ, Phys. Rev. **90**, 308 (1953).
- <sup>13</sup>) L. KATZ, L. PEASE und H. MOODY, Can. Journ. Phys. 30, 476 (1952).
- <sup>4</sup>) L. KATZ, R. G. BAKER und R. MONTALBETTI, Can. Journ. of Phys. 31, 250 (1953).
- <sup>15</sup>) B. C. DIVEN und G. M. ALMY, Phys. Rev. 80, 407 (1950).