Zeitschrift: Helvetica Physica Acta
Band: 30 (1957)
Heft: II-III

Artikel: Lebensdauer und Zerfallsschema von U^235
Autor: Würger, E. / Meyer, K.P. / Huber, P.
DOI: https://doi.org/10.5169/seals-112811

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: 05.08.2025

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

Lebensdauer und Zerfallsschema von U^{235}

von **E. Würger, K. P. Meyer** und **P. Huber.**
(Physikalisches Institut der Universität Basel)

(10. I. 1957.)

Summary. The half life of U^{235} with respect to alpha-decay was measured by comparison of its alpha-activity with the U^{238} and U^{234} activities of a source of natural Uranium. As only one alpha-group of the U^{235} alpha-spectrum can be measured without interference from the other Uranium isotopes, some knowledge of the U^{235} decay-scheme is necessary for the calculation of its half life. Consequently the decay-scheme of U^{235}, proposed by GHIORSO, has been tested and verified in a scintillation-spectrometer by $\alpha-\gamma$ coincidences. Furthermore the conversion of the two γ-rays has been measured. The value of $6{\cdot}84 \pm 0{\cdot}15 \times 10^8$ years found for the half life of U^{235} is in agreement with the value of $7{\cdot}13 \pm 0{\cdot}16 \times 10^8$ years found by absolute activity measurement (FLEMING *et al.*, 1952).

1. Einleitung.

Die Kenntnis der Zerfallskonstanten von U^{235} spielt bei der Altersbestimmung von Uranerzen nach der Methode von NIER[1]) eine ausschlaggebende Rolle. Bekanntlich lässt sich dabei das massenspektrographisch gemessene Verhältnis der Häufigkeit von Aktinium-Blei zu Uran-Blei $N(Pb^{207})/N(Pb^{206})$ folgendermassen als Funktion des Alters t des Erzes darstellen*):

$$\frac{N(Pb^{207})}{N(Pb^{206})} = \frac{N(U^{235})}{N(U^{238})} \frac{e^{\lambda_{235} t} - 1}{e^{\lambda_{238} t} - 1}. \tag{1}$$

Als Parameter gehen nur das gegenwärtige Häufigkeitsverhältnis und die Zerfallskonstanten von U^{235} und U^{238} ein. λ_{238} und das Häufigkeitsverhältnis $N(U^{235})/N(U^{238})$ im natürlichen Isotopengemisch sind mit hinreichender Genauigkeit bekannt[1])[2])[3]). Es bleibt somit nur noch der Wert der Zerfallskonstanten von U^{235} zu bestimmen.

*) N bezieht sich auf das Atomzahlen- und nicht auf das Massenverhältnis.

Als erster hat NIER[1]) unter Verwendung von Erzen, deren Alter t anderweitig bekannt war, λ_{235} aus Gleichung (1) bestimmt. Damit ist λ_{235} aber mit der Unsicherheit dieser anderen Altersbestimmungen behaftet.

Der direkte Weg einer absoluten Aktivitätsmessung an reinem U^{235} wurde von FLEMING u. a.[2]) beschritten. Die Schwierigkeit dieser Messung wird durch die Tatsache illustriert, dass das Präparat von FLEMING mit einem Gehalt von 99,94% U^{235} immer noch eine U^{234}-Aktivität von 34,7% aufwies.

Eine andere Methode, die in der vorliegenden Arbeit benützt wird, schliesst den Wert von λ_{235} an den sehr genau bekannten Wert von λ_{238}[3]) an. Für das Verhältnis V der α-Aktivitäten der Uran-Isotopen 235 und 238 resp. 234 im natürlichen Gemisch gilt*):

$$V = \frac{N(U^{235}) \cdot \lambda_{235}}{N(U^{238}) \cdot \lambda_{238}} = \frac{N(U^{235}) \cdot \lambda_{235}}{N(U^{234}) \cdot \lambda_{234}}.$$

Es wird daher

$$\lambda_{235} = \lambda_{238} \cdot V \frac{N(U^{238})}{N(U^{235})}. \tag{2}$$

Die Messung von V ist somit äquivalent einer Bestimmung von λ_{235}. Dabei kommt es aber entscheidend darauf an, dass bei den Aktivitätsbestimmungen alle Komponenten der α-Feinstruktur der Uranisotopen mitberücksichtigt werden. Bei U^{238} und U^{234} wird die Messung der totalen α-Aktivität in der Ionisationskammer durch die Feinstruktur dieser beiden Uranisotopen[4])[5])[6]) nicht gestört. Man misst aber bei beiden Isotopen noch je eine α-Komponente des U^{235} mit. Beim U^{235} dagegen lässt sich nur eine α-Komponente (Häufigkeit 85,6%) ohne Störung durch die übrigen Uranisotopen messen. Die von GHIORSO[7]) bestimmte Feinstruktur der α-Strahlung des U^{235} geht daher entscheidend in die Messung ein. GHIORSO hat sein α-Spektrum mit dem gleichen 99,94% U^{235}-Präparat wie FLEMING aufgenommen. Sein Spektrum enthielt somit ebenfalls 34,7% U^{234}-α-Strahlung. Wir fanden es angebracht, das von GHIORSO einzig auf Grund dieses α-Spektrums vorgeschlagene Zerfallsschema von U^{235} mit Hilfe von α-γ-Koinzidenzen zu überprüfen.

Bei der Messung von V selbst, die mit Ionisationskammer und Impulsspektrograph durchgeführt wurde, handelt es sich gegenüber früheren Autoren[8])[9])[10]) um Verbesserungen hinsichtlich Auflösung des α-Spektrums und der statistischen Messgenauigkeit.

---

*) U^{234} und U^{238} stehen im radioaktiven Gleichgewicht.

2. Überprüfung des Zerfallsschemas von U^{235} mit Hilfe von α-γ-Koinzidenzen.

2.1. *Einleitung.*

In dem von GHIORSO[7]) vorgeschlagenen Zerfallsschema (Fig. 1) wurden von ihm die drei α-Linien hinsichtlich Energie und Häufigkeit gemessen. γ_I wurde von MACKLIN[11]) und SCOTT[4])[12]) an Uranpräparaten mit einer Energie von 162, resp. 167 keV (Absorptionsmessungen) festgestellt. BELL u. a.[4])[13]) stellten im Szintillationsspektrometer neben γ_I (184 keV) vier weitere Linien fest, deren

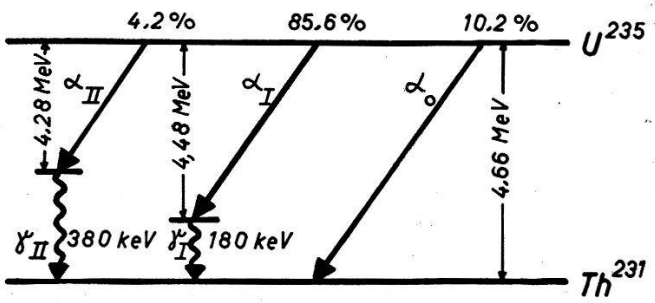

Fig. 1.
Zerfallsschema von U^{235}, vorgeschlagen von GHIORSO[7]).
Die Prozent-Zahlen geben die Häufigkeit (g) der einzelnen Feinstruktur-Komponenten an.

schwächste γ_{II} entsprechen würde. S. A. E. JOHANSSON[24]) fand ebenfalls verschiedene γ-Linien, die nur teilweise mit denen von BELL u. a. übereinstimmen. Bei der im folgenden durchgeführten Überprüfung des Zerfallsschemas mit Hilfe von α-γ-Koinzidenzen sollen im Szintillationsspektrometer auch die Energien von α_I, α_{II}, γ_I, γ_{II} sowie die Konversionskoeffizienten der beiden γ-Linien bestimmt werden.

2.2. *Apparatur.*

2.21. *Versuchsanordnung.*

Die Versuchsanordnung (Fig. 2) besteht aus zwei einzeln oder in Koinzidenz geschalteten NaJ (Tl)-Szintillationszählern zur Registrierung der α- und γ-Strahlung. Die Energie der α- oder der γ-Strahlung kann wahlweise mit einem photographischen Impulsspektrographen[14])[16]) gemessen werden. Zur Auslösung des Impulsspektrographen können entweder die α- oder die γ-Strahlen oder deren Koinzidenzen verwendet werden.

2.22. *Uranpräparat.*

Als Quelle verwendeten wir einen homogenen U_3O_8-Film (Kreisfläche von 12 mm Durchmesser), der aus 3 cm^3 einer 0,1 %-Uranylacetatlösung von 80° C bei einer Stromdichte von 1,5 mA/cm^2 in-

nerhalb von 40 Minuten elektrolytisch auf einer Platin-Kathode niedergeschlagen wurde. Diese bestand aus einem sorgfältig entfetteten und polierten Pt-Blech von 18 mm Durchmesser und 0,065 mm Dicke und diente im weiteren als Quellenträger. Um das $UO_2(CH_3CO_2)_2 \cdot 2\ H_2O$ in Lösung zu bringen, musste mit Essigsäure auf $p_H = 4{,}7$ angesäuert werden. Die Homogenität der

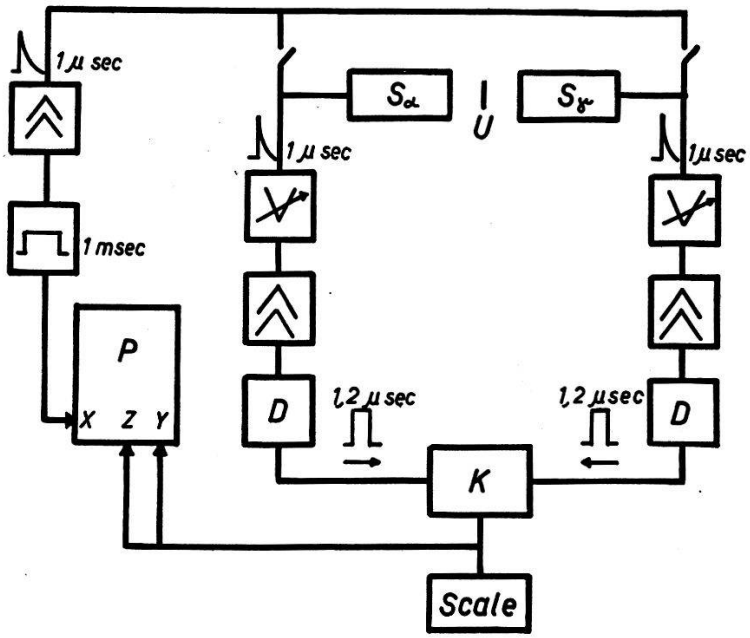

Fig. 2.
Versuchsanordnung.

U	U_3O_8-Quelle.	K	Koinzidenzstufe.
S_α	Szintillationszähler für α-Teilchen.	P	Photographischer Impulsspektrograph mit den Eingängen für:
S_γ	Szintillationszähler für γ-Strahlung.	X	Energiemessung.
	Regulierbarer Abschwächer.	Y	Häufigkeitsmessung
D	Diskriminator und Trigger.	Z	Hellsteuerung.

Schicht konnte durch ein Pt-Rührwerk, das gleichzeitig Anode war, verbessert werden. Die Tourenzahl des Rührwerks betrug 500 Umdrehungen pro Min. Die so erzeugten homogenen und gut haftenden Schichten zeigten die „Farben dünner Blättchen". Das verwendete Uran war auf 5,7% U^{235} angereichert*).

2.23. *Anordnung der Szintillationskristalle und der Uranquelle (Fig. 3).*

Das Uranpräparat wurde so zwischen die Kristalle gebracht, dass die oben beschriebene Pt-Unterlage auf die γ-Seite zu liegen kam. Zur Registrierung der α-Strahlung wurde ein dünner quaderförmiger

*) Siehe Seite 172. Das angereicherte U^{235}-Präparat wurde vom Laboratorium voor Massaspectografie, Amsterdam, hergestellt.

NaJ (Tl)-Kristall (12 × 12 × 2 mm) verwendet. Um eine gute Auflösung des α-Spektrums zu erzielen, war es von entscheidender Bedeutung, die Kristallfläche, in die die α-Partikel eingestrahlt werden sollten, als frische Spaltfläche im Trockenschrank (relative Luftfeuchtigkeit < 10%) herzustellen und unmittelbar darnach den Kristall in die Fassung (Fig. 3) einzusetzen. Nach Zugabe von

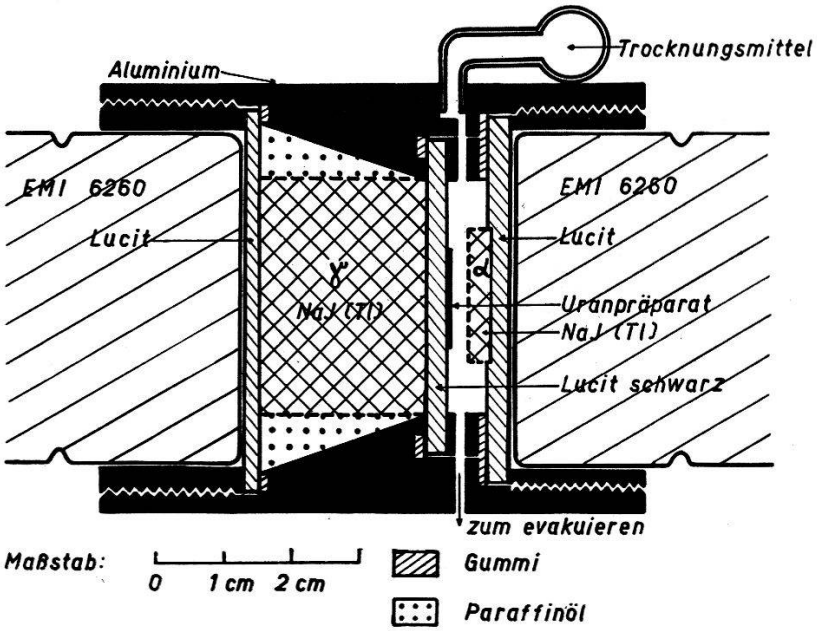

Fig. 3.

Anordnung der NaJ(Tl)-Kristalle und der Uranquelle zur Registrierung von α-γ-Koinzidenzen.

Natrium als Trocknungsmittel wurde der Hohlraum der Fassung evakuiert. Als Kitt zur Erzielung des optischen Kontaktes zwischen Kristall und Lucitunterlage diente eine hochviskose Lösung von Polystyrol, die auch im Vakuum keinerlei Luftblasen bildet[17]). Szintillatoren, die nach diesem Verfahren präpariert wurden, zeigten während ca. 2 Monaten α-Linien unveränderter Halbwertsbreite. Zur Registrierung der γ-Strahlung diente ein zylindrischer NaJ(Tl)-Kristall von 35 mm Durchmesser und 24 mm Höhe. Der Kristall war mit Paraffinöl umgeben, das gleichzeitig den optischen Kontakt mit der Lucitunterlage herstellte. Damit keinerlei Kopplung der beiden Photomultiplier durch das Fluoreszenzlicht des NaJ stattfinden konnte, wurde die 3 mm starke Wand zwischen den beiden Zählern aus schwarzem Lucit hergestellt. Da diese gleichzeitig als Reflektor dient, war sie beidseitig spiegelnd veraluminisiert. Zur Herstellung des optischen Kontaktes zwischen den Multipliern und den beiden äusseren Lucitplatten diente Silicon-Fett.

2.24. *Photomultiplier.*

Um die für die α-Spektren erforderliche hohe Auflösung zu erzielen, verwendeten wir Multiplier vom Typ EMI 6260 mit ausgesucht hoher Photoempfindlichkeit. Impulsspektrogramme mit kollimierter Cs^{137}-γ-Strahlung und NaJ-Szintillatoren ergaben Halbwertsbreiten der Photolinie von 7,9% resp. 8,3%, was einer

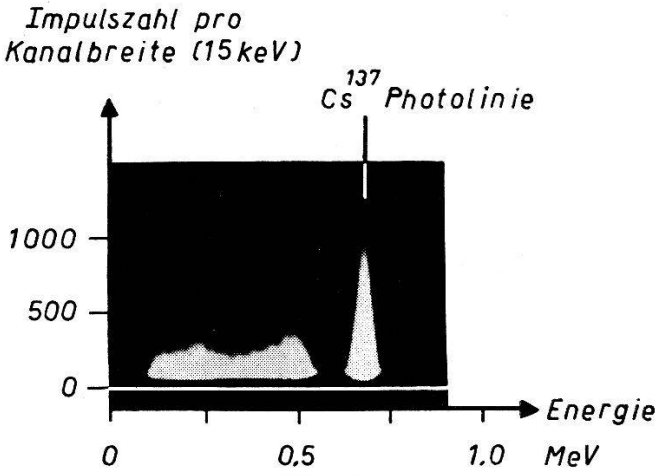

Fig. 4.
Spektrum der Cs^{137}-γ-Strahlung, registriert mit Hilfe eines NaJ(Tl)-Szintillationszählers (11400 Impulse, Expositionszeit 1,9 Min.). Testaufnahme zur Prüfung der Photokathode des auf der α-Seite verwendeten Multipliers. Halbwertsbreite der Photolinie 7,9%.

Empfindlichkeit von 1340 resp. 1230 Photoelektronen pro MeV entspricht (Fig. 4). Auf der α-Seite der Anordnung wurde der bessere der beiden Multiplier verwendet.

2.25. *Koinzidenzanordnung.*

Die Koinzidenzanordnung besass ein Auflösungsvermögen von 1,2 μs. Die Zahl der zufälligen Koinzidenzen wurde direkt durch Einschalten von Laufzeitketten von 2 μs in die Impulskanäle bestimmt. Am Ausgang der Koinzidenzanordnung konnten durch einfache Umschaltung entweder die Impulse der einzelnen Kanäle oder die Zweifachkoinzidenzen abgegriffen werden. Alle wesentlichen Spannungen und Verstärker waren ausreichend stabilisiert.

2.26. *Impulsspektrograph.*

Ein einfacher photographischer Impulsspektrograph[14]) diente zum Aufzeichnen der Spektren. Jeder photographisch aufgezeichnete Impuls wurde zudem in einem Zählwerk registriert. Die Auslösung und die Hellsteuerung der Braun'schen Röhre des Impulsspektrographen erfolgte durch die Ausgangsimpulse der Koinzidenz-

anordnung. Die Energieskala wurde hinsichtlich ihrer Linearität mit Testimpulsen geprüft. Die grössten Abweichungen von der Linearität betragen (bei grosser Abszisse) 2,5%. Bei allen Zahlenangaben (ebenfalls an den Energieskalen der reproduzierten Spektren) sind entsprechende Korrekturen bereits angebracht. Die Intensität wird in Impulsen pro „Kanalbreite" angegeben. „Kanalbreite" bedeutet hier die Halbwertsbreite einer mit Testimpulsen erzeugten, künstlichen monochromatischen Linie. Die Ordinate der Spektrogramme gibt die Intensität der Linien angenähert linear wieder, da statt einem Graukeil[16]) eine exponentielle Zeitablenkung verwendet wurde, die die logarithmische Registrierung der photographischen Platte näherungsweise kompensiert. Die Linearität wurde mit Testimpulsen überprüft. Die maximalen Abweichungen vom linearen Gang betragen ca. 10%. Da die photographische Häufigkeitsskala nur zur Beurteilung statistischer Schwankungserscheinungen benützt wird, ist diese Genauigkeit ausreichend. Für kleinere Impuls-Frequenzen wurden bereits 4 Impulse am gleichen Ort als Schwärzung registriert (Agfa Isochrom-Platte 18/10 DIN); für grössere dagegen wurde die Schwellenschwärzung auf 90 Impulse am gleichen Ort eingestellt (Gevaert Extra Ortho-Platte ca. 4/10 DIN).

2.3. *Messungen.*

2.31. *α-Spektrum von U^{235} gemessen in Koinzidenz mit der γ-Strahlung des Th^{231}.*

Ghiorso bestimmte die Energien der U^{235}-α-Teilchen zu:

$E(\alpha_0^{235}) = 4{,}58$ MeV; $E(\alpha_I^{235}) = 4{,}40$ MeV; $E(\alpha_{II}^{235}) = 4{,}20$ MeV.

In dem von uns benutzten, an U^{235} angereicherten Präparat, wurde bei der massenspektrographischen Separierung aus dem natürlichen Isotopengemisch das U^{234} nicht viel schlechter (0,79-fach*)) angereichert als das U^{235}. Wegen der im Vergleich zum U^{235} kurzen Halbwertszeit des U^{234}, rührt die α-Strahlung unseres Präparates zu 82% vom U^{234} her*). Es war deshalb zu erwarten, dass das Spektrum der α-Strahlung zur Hauptsache aus einer einzigen Linie, der U^{234}-α-Linie besteht (Fig. 5). Die α-Linie des U^{238} fehlt, wie ein Vergleich mit Fig. 6 (α-Spektrum des natürlichen Isotopengemisches) zeigt.

Registriert man dagegen nur diejenigen α-Teilchen, die in Koinzidenz mit γ-Quanten auftreten (Fig. 7b), so tritt eine α-Linie auf, die relativ zur U^{234}-α-Linie gegen kleinere Energien verschoben ist (α_I^{235}-Linie). Die U^{234}-α-Linie selbst ist aber verschwunden. Fig. 7a und 7c geben das α-Spektrum ohne Koinzidenzsteuerung (wie

*) Siehe Seite 172.

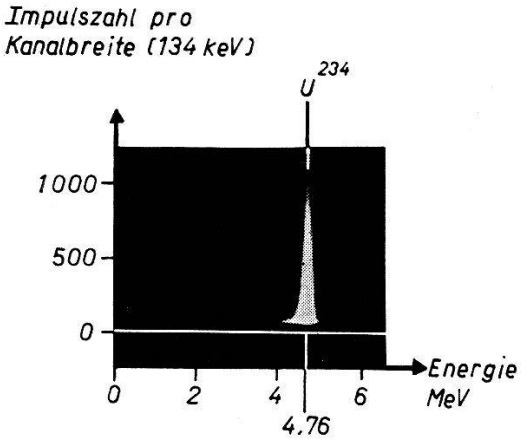

Fig. 5.

Gesamt α-Spektrum des angereicherten Uranpräparates. Nur die U^{234}-Linie erscheint. (2400 Impulse, Expositionszeit 4,5 Min.).

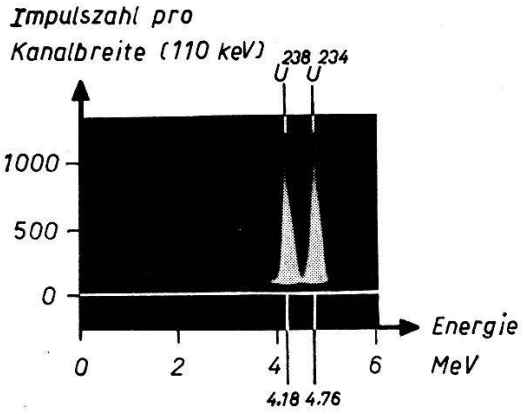

Fig. 6.

α-Spektrum des natürlichen Isotopengemisches von Uran. (4400 Impulse, Expositionszeit 40 Min.)

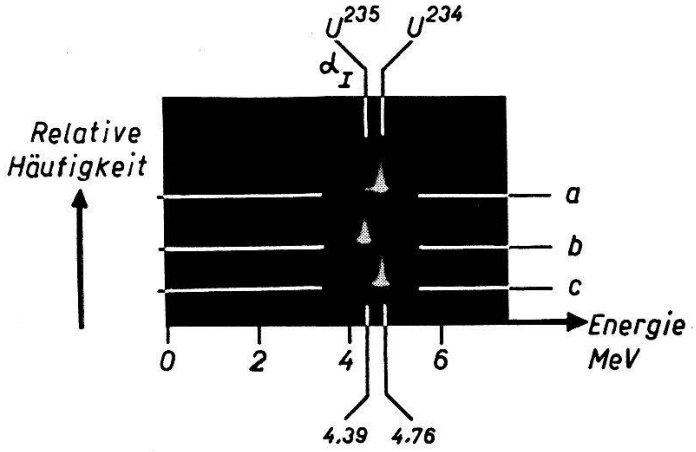

Fig. 7.

α-Spektrum des angereicherten Uranpräparates.

a und *c* Ohne Koinzidenz-Steuerung des Impulsspektrographen*) (je ca. 750 Impulse, Expositionszeit je 1 Min.).

b Mit Koinzidenz-Steuerung des Impulsspektrographen. Diskriminierung der γ-Energie bei 67 keV, der α-Energie bei 450 keV (ca. 1100 Impulse, Expositionszeit 260 Min.).

---

*) Beim Energiewert der Koinzidenzlinie sieht man auch in Aufnahme *a* eine merkliche Schwärzung. Diese rührt von der Summation der unterschwelligen Vorbelichtung in *a* mit der ebenfalls unterschwelligen Nachbelichtung durch *b* her. In Aufnahme *c* fehlt die Nachbelichtung durch *b*; dementsprechend tritt die fragliche Schwärzung nicht auf.

Fig. 5) vor und nach Aufnahme 7b wieder. Das Verhältnis der Expositionszeiten von 260 Min. für Fig. 7b (Koinzidenz) gegenüber 1 Min. für die Aufnahmen 7a und 7c (ohne Koinzidenz-Steuerung) zeigt, in welchem Ausmass die U^{234}-α-Linie mit der Koinzidenzanordnung unterdrückt wird.

Die Eichung der Energieskala erfolgte mit Hilfe der α-Linien von U^{234} und U^{238}. Die Energie der in Koinzidenz erscheinenden α_{I}^{235}-Linie ergibt sich hieraus zu 4,390 $\pm$ 0,015 MeV, was unter Berücksichtigung der Energie des Rückstosskernes von 76 keV eine Niveaudifferenz zwischen dem Grundzustand des U^{235}-Kernes und einem ersten angeregten Zustand des Th^{231}-Kernes (Fig. 1) von 4,466 $\pm$ 0,015 MeV bedeutet. Dies stimmt mit der von Ghiorso für die Linie α_{I}^{235} angegebenen Niveaudifferenz von 4,48 MeV sehr gut überein. Um die α_{I}^{235}-Linie in Koinzidenz zu erhalten, wurde auf der γ-Seite bei 67 keV diskriminiert. Eine Erhöhung der Diskriminierung auf 233 keV bringt die Linie bei sonst unveränderten Versuchsbedingungen zum Verschwinden, was mit der Energie von 180 keV für γ_{I}^{235} [4][7]) konsistent ist. Dass es sich wirklich um α-γ-Koinzidenzen des U^{235} handelt, zeigte eine Messung mit Uran im natürlichen Isotopengemisch, bei der praktisch keine Koinzidenzen auftraten.

Im weiteren wurde nun versucht, die von Ghiorso gemessene schwache Linie α_{II}^{235} (4,2%) in Koinzidenz nachzuweisen. Zu diesem Zwecke wurden analoge Aufnahmen wie Fig. 7, nun aber mit längerer Belichtungszeit (560 Min.) und mit empfindlicherem Plattenmaterial ausgeführt. Um die Linie α_{I}^{235} auszuschliessen, wurde auf der γ-Seite bei 300 keV diskriminiert. Die Resultate zeigt Fig. 8. Hier sind die statistischen Schwankungen in der Linienform bereits sehr erheblich, da schon 4 Impulse am gleichen Ort eine Schwärzung ergeben. Insgesamt enthält die in Koinzidenz gemessene α_{II}^{235}-Linie (Fig. 8b) nur 131 Impulse. Fig. 8a und 8c zeigen mit einer Belichtungszeit von je 0,13 Min. (zeitlich vor und nach Aufnahme 8b) das α-Spektrum ohne Koinzidenz-Steuerung. Die in Koinzidenz auftretende α_{II}^{235}-Linie erscheint hier noch stärker nach kleineren Energien verschoben wie die α_{I}^{235}-Linie (Fig. 7b). Ihre Energie ergibt sich zu 4,175 $\pm$ 0,044 MeV, sodass die entsprechende Niveaudifferenz zwischen dem Grundzustand des U^{235}-Kernes und einem zweiten angeregten Zustand des Th^{231}-Kernes (Fig. 1) 4,251 $\pm$ 0,044 MeV beträgt, in Übereinstimmung mit dem von Ghiorso gemessenen Wert von 4,28 MeV. Analog wie bei der α_{I}^{235}-Linie konnten die α-γ-Koinzidenzen auch für die α_{II}^{235}-Linie zum Verschwinden gebracht werden, indem für die γ-Strahlung oberhalb der von Ghiorso vorgeschlagenen Energie der γ_{II}^{235}-Linie von 380 keV diskriminiert wurde, nämlich bei 418 keV.

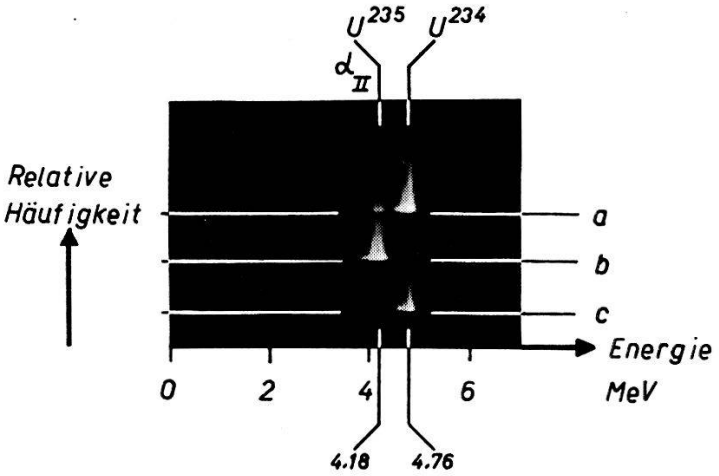

Fig. 8.

α-Spektrum des angereicherten Uranpräparates.

a und *c* Ohne Koinzidenz-Steuerung des Impulsspektrographen*) (je ca. 100 Impulse, Expositionszeit je 0,13 Min.).

b Mit Koinzidenz-Steuerung des Impulsspektrographen. Diskriminierung der γ-Energie bei 300 keV, der α-Energie bei 450 keV. (131 Impulse, Expositionszeit 560 Min.)

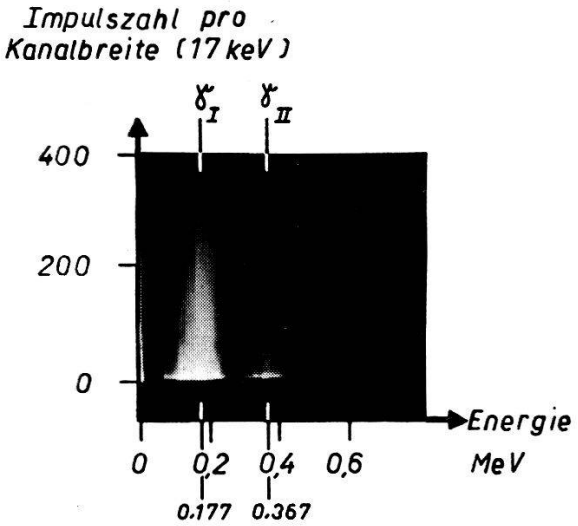

Fig. 9.

Spektrum der γ-Strahlung von Th^{231} in Koinzidenz mit α-Strahlung von U^{235}. Diskriminierung im γ-Kanal bei 67 keV, im α-Kanal bei 450 keV. (1336 Impulse in 290 Min.). Schwellenschwärzung durch 4 Impulse am gleichen Ort.

---

*) Siehe Fussnote auf Seite 164.

2.32. *γ-Strahlung von Th^{231} gemessen in Koinzidenz mit der α-Strahlung des U^{235}.*

Die Eichung der Energieskala erfolgte mit den Photolinien von Cs^{137} und In^{111}. Eine Messung des Th^{231}-γ-Spektrums ohne Hilfe von Koinzidenzen war von vornherein unmöglich. Beim Volumen des benutzten NaJ-Kristalls von 23 cm^3 war ein Nulleffekt von 2100 Impulsen pro Min. zu erwarten, gegenüber einem γ-Effekt von ca. 10 Impulsen pro Min.

Fig. 9 zeigt das Spektrum der γ-Strahlung des benutzten Uranpräparates, das in Koinzidenz mit der α-Strahlung festgestellt wurde. Die Diskriminierung im α-Kanal lag bei 450 keV, im γ-Kanal bei 67 keV, so dass die 53 keV γ-Strahlung des U^{234} [4][5]) nicht mehr in Erscheinung trat. Man erkennt zwei γ-Linien, eine intensivere bei 177 $\pm$ 23 keV und eine schwächere bei 367 $\pm$ 31 keV. Damit sind die im Zerfallsschema von Ghiorso erwarteten Linien γ_{I}^{235} und γ_{II}^{235} in Koinzidenz nachgewiesen. Seine γ-Energien von 180 resp. 380 keV stimmen gut mit unseren Messungen überein.

Im Gegensatz zu der in Fig. 4 aufgenommenen Cs^{137}-γ-Linie ist die Auflösung für das oben angegebene γ-Spektrum viel schlechter. Um eine hohe Koinzidenz-Ausbeute zu erhalten, musste ein schlechtes Energieauflösungsvermögen für die γ-Strahlung in Kauf genommen werden. Dies ist in der Hauptsache bedingt durch die nicht kollimierte Einstrahlung, die flächenhafte Quelle und den grossen NaJ(Tl)-Kristall. Der Zweck der Messung war eine Identifizierung der beiden γ-Linien in Koinzidenz. Hierfür reicht die erzielte Genauigkeit der Energiemessung von 13% resp. 8,5% aus.

Ferner wurde die Anzahl der α-γ-Koinzidenzen in Abhängigkeit von der γ-Diskriminierung gemessen (Fig. 10). Das so erhaltene integrale γ-Spektrum zeigt einen nahezu energieunabhängigen Untergrund von 0,296 $\pm$ 0,020 Koinzidenzen pro Min., der auch nach Entfernen des Uranpräparates verblieb. Das der 380 keV γ-Linie zuzuordnende Plateau ist zwischen 220 und 320 keV deutlich zu erkennen. Das zur 180 keV γ-Linie gehörende Plateau zeigt sich zwischen 50 und 120 keV. Unterhalb 50 keV tritt ein weiterer Anstieg auf, der der 53 keV-Linie des U^{234} zugeordnet werden muss. Es handelt sich bei diesem Anstieg weder um Untergrund-Koinzidenzen, noch um zufällige Koinzidenzen. Letztere sind in Fig. 10 bereits subtrahiert und betragen maximal 1,7% der wahren Koinzidenzen. Der Anstieg der Kurve unterhalb 50 keV ist somit wahren α-γ-Koinzidenzen zuzuordnen und nach den über den α-Zerfall von U^{234} bekannten Daten[4][5][6]) auch zu erwarten, wie folgende Abschätzung zeigt: Die fragliche Feinstruktur-Komponente von

U^{234} tritt mit 26% Häufigkeit auf. Mit dem verwendeten Uranpräparat sind in unserer Anordnung ohne Berücksichtigung der Konversion der 53 keV γ-Linie rund 15 zugehörige Koinzidenzen pro Min. zu erwarten. Die γ-Linie ist stark[15]), aber nicht völlig[4])[5])[13]) konvertiert. Der von uns beobachtete Anstieg von mindestens einem Koinzidenzimpuls pro Min. führt daher zu keinem Widerspruch, falls der Konversionskoeffizient der 53 keV γ-Linie kleiner als 14 ist.

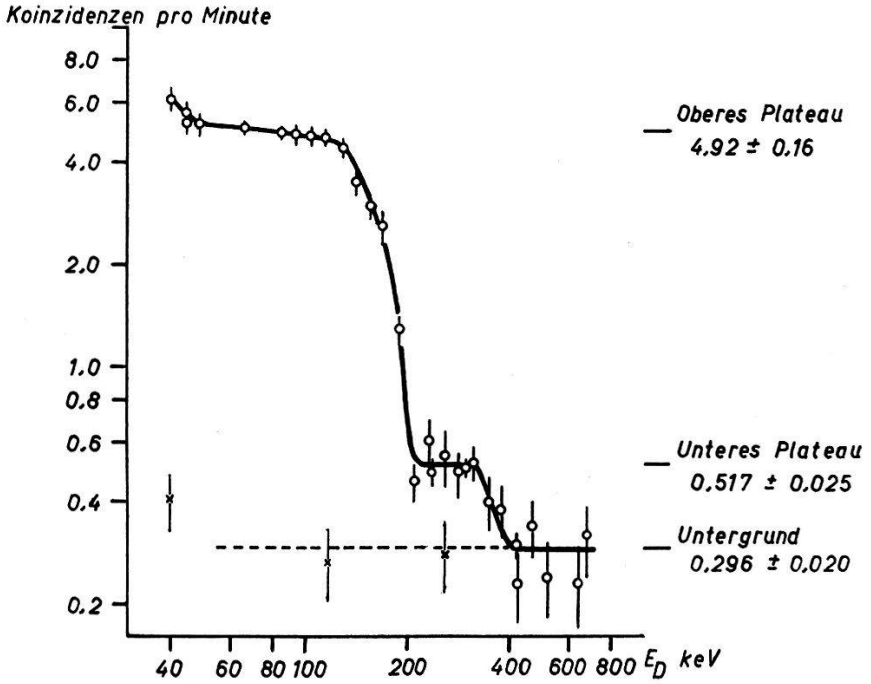

Fig. 10.

α-γ-Koinzidenzen des U^{235} in Abhängigkeit von der Diskriminierung im γ-Kanal. E_D ist die Energie der Compton- oder Photoelektronen, bei der im γ-Zähler diskriminiert wird.

○ Messpunkte mit Uranpräparat. × Messpunkte ohne Uranpräparat.

Die Begrenzung unserer Messungen gegen kleinere γ-Energien hin war durch die Absorption des Quellenträgers (Pt-Folie) vorgegeben. Beim tiefsten Messpunkt (40 keV) sowie am Ort der K-Absorptionskante (78,6 keV) war die γ-Durchlässigkeit in der Normalrichtung nur noch 29%. Die 53 keV γ-Linie des U^{234} fällt gerade zwischen die K- und L-Kante des Pt und kommt daher zu 58% durch, während die beiden U^{235}-γ-Linien zu 87% (180 keV) und zu 97,5% (380 keV) durchgelassen werden. Figur 10 zeigt weiterhin, dass die Diskriminierung der γ-Strahlen bei 67 keV, wie sie in der Fig. 7 und 9 angewendet wurde, die U^{234} α-γ-Koinzidenzen des 53 keV-Niveaus unterdrückt. Das zweite angeregte Niveau des U^{234} wird bei 170 keV erwartet[4])[5])[6]) und muss α-γ-Koinzidenzen mit $E_\gamma = 118 \pm 2$ keV liefern, die sich in Fig. 7, 9 und 10 den U^{235}-Koinzidenzen überlagern. Die Störung ist aber aus Intensitätsgründen be-

langlos: VALLADAS[6]) schätzt die Häufigkeit dieses seltenen Überganges zu 3—4 Promille ab; relativ zu den U^{235}-α-Zerfällen in unserem Präparat würde das (unter Berücksichtigung eines Konversionskoeffizienten von 0,5) 4—5% ausmachen. In Fig. 7 sieht man nichts von einer entsprechenden α-Linie bei 4,59 MeV. Auch in Fig. 9 kann dieser Beitrag bei 118 keV den Schwerpunkt der 180 keV γ-Linie nicht merklich beeinflussen. In Fig. 10 dagegen ist möglicherweise die leichte Neigung des oberen Plateaus, das gerade bei 120 keV beginnt, zum Teil durch diesen Effekt bedingt. Die Fehlerschranke der verwendeten mittleren Plateauhöhe ($\pm$ 3,25%) wurde so gewählt, dass das Plateau in seiner ganzen Ausdehnung eingeschlossen ist.

Um aus den Plateauhöhen in Fig. 10 auf die Konversionskoeffizienten der beiden γ-Linien schliessen zu können, benötigen wir noch deren Ansprechwahrscheinlichkeiten.

2.33. *Bestimmung der Ansprechwahrscheinlichkeiten des NaJ-Zählers für γ-Strahlung.*

Die Ansprechwahrscheinlichkeit (ε) gut kollimierter, weicher γ-Strahlung aus einer punktförmigen Quelle lässt sich für einen grossen zylindrischen NaJ-Kristall bei axialer Einstrahlung recht genau berechnen[18]). Durch Messung unter diesen Bedingungen konnte die Quellstärke eines In^{111}-Präparates auf 5% genau bestimmt werden.

Eine zweite Indiumquelle, deren Form gleich war wie diejenige der Uranquelle, wurde durch Relativmessung an die erste angeschlossen und dann an Stelle des Uran-Präparates in die Versuchsanordnung eingebracht. Als Quellenträger musste natürlich eine genau gleiche Pt-Folie wie bei den Uranversuchen verwendet werden. Auf diese Weise lässt sich das Raumwinkel-Integral der Ansprechwahrscheinlichkeit $A_\gamma = \int \varepsilon \, d\omega$ für die In^{111}-γ-Strahlung bei identischer geometrischer Anordnung wie in den Uranexperimenten bestimmen. Schliesslich müssen die so gewonnenen A_γ-Werte noch auf die Energie der U^{235}-γ-Strahlung umgerechnet werden.

Umrechnungen von Ansprechwahrscheinlichkeiten ε auf andere Energien lassen sich wegen der erheblichen Absorption der Compton-Streustrahlung in grossen Kristallen nur für zwei spezielle Diskriminierungen des Zählers durchführen. Entweder muss so diskriminiert werden, dass nur die Photolinie registriert wird. Für diesen Fall gibt MAEDER[18]) den „effektiven" Anteil des Koeffizienten der Photoabsorption $\mu_{P\,\mathrm{eff}}$ am totalen Absorptionskoeffizienten μ_{total} in Abhängigkeit von den Kristalldimensionen und der γ-Energie an. Oder aber es muss nahe bei der Energie Null diskriminiert werden. Dann

setzt sich der Absorptionskoeffizient für die untersuchten γ-Energien aus den Koeffizienten für die Photoabsorption μ_P und die Compton-Streuung μ_C zusammen. Solange man keine Absorption der Compton-Streustrahlung betrachtet, ergäbe sich μ_C einfach durch Integration des differentiellen Compton-Querschnittes*) über das Gebiet zwischen der diskriminierenden Energie E_D und der „Compton-Spitze". In Wirklichkeit spielen aber Mehrfachprozesse in grossen Kristallen eine erhebliche Rolle[18]), so dass der Beitrag an den Wert von μ_C, der durch die Integration zwischen den Grenzen E_D und Null hinzukommt, berücksichtigt werden muss; dies allerdings mit einem Gewicht, das je nach Form und Grösse des Kristalls irgendwo zwischen Null und Eins liegt. Da in unserem Falle nicht kollimierter Einstrahlung eine Berechnung dieses Gewichtes völlig aussichtslos ist, führen wir je die Hälfte des fraglichen Beitrages als Korrektur und als Fehler in unseren Absorptionskoeffizienten ein. Je tiefer man E_D wählt, um so kleiner kann man diesen Fehler machen, der im übrigen entscheidend von der γ-Energie, das heisst vom Verhältnis μ_C/μ_P abhängt.

Tabelle 1.

Integrale Ansprechwahrscheinlichkeit des γ-Zählers. $A_\gamma = \int \varepsilon \, d\omega$.

Für das Verhältnis von zwei A_γ-Werten ist der Messfehler erheblich kleiner, als wie es einem Quotienten aus 2 Tabellen-Werten entsprechen würde. E_D bedeutet die Energie der Compton- oder Photoelektronen bei der im γ-Zähler diskriminiert wird.

γ-Strahler	Bezeichnung der γ-Linie	γ-Energie (keV)	E_D(keV)	Integrale Ansprechwahrscheinlichkeit des γ-Zählers A_γ
In^{111}		172	67	$0{,}174 \pm 0{,}011$
In^{111}		247	67	$0{,}189 \pm 0{,}012$
U^{235}	γ_I	180	86	$0{,}179 \pm 0{,}013$
U^{235}	γ_{II}	380	86	$0{,}146 \pm 0{,}011$
U^{235}	γ_{II}	380	300*)	$0{,}124 \pm 0{,}012$

*) E_D unterhalb der Photolinie, aber noch oberhalb der Compton-Spitze.

Mit Hilfe der so gefundenen Absorptionskoeffizienten und dem Weglängenspektrum der Strahlung im NaJ-Kristall wurden die Relativwerte der integralen Ansprechwahrscheinlichkeiten A_γ für die beiden Indiumlinien (172 und 247 keV) und die beiden Uranlinien (180 und 380 keV) berechnet. Die merkliche Absorption der In^{111}- und U^{235}-γ-Strahlung im Quellenträger (Pt-Folie) wurde bei der Berechnung der Relativwerte bereits berücksichtigt und zwar

*) Differentiation nach der Energie der Compton-Elektronen.

wiederum mit Hilfe eines Weglängenspektrums. Die berechneten Relativwerte der integralen Ansprechwahrscheinlichkeiten für In^{111} gestatten es, zunächst eine Aufteilung der gemessenen Bruttoansprechwahrscheinlichkeit auf die beiden In^{111}-γ-Linien (172 und 247 keV) vorzunehmen und daraus die Absolutansprechwahrscheinlichkeiten der U^{235}-γ-Linien (180 und 380 keV) zu berechnen (Tabelle 1).

2.34. *Konversionskoeffizienten und relative Intensitäten der beim U^{235}-α-Zerfall auftretenden γ-Strahlung.*

Zahlenmässig ist über die Konversion der γ-Strahlung, die beim U^{235}-α-Zerfall auftritt, nichts bekannt. MACKLIN[11]) erwartet geringe Konversion für $\gamma_{\mathrm{I}}^{235}$ auf Grund seiner im γ-Zählrohr beobachteten Stosszahlen. Die Konversionskoeffizienten sollen im folgenden mit Hilfe von α-γ-Koinzidenzen bestimmt werden:

Es sei g_i die Häufigkeit einer einzelnen Feinstrukturkomponente i im Zerfallsschema des U^{235} (Fig. 1). N_{235} ist die Zahl der U^{235}-Zerfälle pro Min. in unserem Präparat. Dann wird die Zahl der registrierten α-γ-Koinzidenzen für die Feinstrukturkomponente i:

$$K_i = k_i\, g_i\, N_{235}\, A_\alpha\, A_{\gamma,i} \quad (i = \mathrm{I} \text{ oder } \mathrm{II}) \tag{3}$$

k_i ist ein Faktor zwischen Null und Eins und gibt an, in welchem Bruchteil der Fälle ein nichtkonvertiertes γ-Quant emittiert wird. Aus k_i ergibt sich der übliche Konversionskoeffizient δ zu:

$$\delta_i = \frac{1}{k_i} - 1$$

A_α und $A_{\gamma,i}$ bedeuten die integralen Ansprechwahrscheinlichkeiten für die α- bzw. γ_i-Strahlung*). Führt man $n_{235} = N_{235}\, A_\alpha$ die Stosszahl der registrierten U^{235}-α-Teilchen in (3) ein, so ergibt sich für k_i:

$$k_i = \frac{K_i}{n_{235}\, g_i\, A_{\gamma,i}}\,. \tag{4}$$

In der Gleichung (4) ist die Grösse n_{235} noch unbekannt. Um sie zu bestimmen wurde das α-Spektrum des angereicherten Präparates in der Ionisationskammer ausgemessen**). Die relativen Intensitäten der drei separierbaren Liniengruppen $J(\alpha^{234} + \alpha_0^{235})$, $J(\alpha_{\mathrm{I}}^{235})$ und $J(\alpha^{238} + \alpha_{\mathrm{II}}^{235})$ ergaben sich zu den respektiven Werten (in %):

$$a = 82{,}6 \pm 0{,}8; \quad b = 4{,}24 \pm 0{,}25; \quad c = 13{,}2 \pm 0{,}4.$$

Mit Hilfe der Werte g_0, g_{I} und g_{II} von GHIORSO errechnen sich

*) Unterschiede in A_α für die drei Uranisotopen, resp. deren Feinstrukturkomponenten werden vernachlässigt.

**) Für die Durchführung dieser Messungen sind wir Herrn F. Seiler zu Dank verpflichtet.

daraus die relativen α-Aktivitäten der drei Uranisotopen 234, 235, 238 zu 82,1%, $4{,}9_5$% und $12{,}9_5$%*).

Ohne Verwendung des Zahlenwertes von g_{I} ergibt sich das in Gleichung (4) auftretende Produkt $m_{\mathrm{I}} = n_{235}\, g_{\mathrm{I}}$ direkt aus den Messungen zu $m_{\mathrm{I}} = d \cdot b/100 = 27{,}3 \pm 1{,}6$, wobei $d = n_{234} + n_{235} + n_{238} = 644 \pm 3$ die Zahl der insgesamt im Szintillationszähler pro Min. registrierten α-Impulse bedeutet. Bei $m_{\mathrm{II}} = n_{235}\, g_{\mathrm{II}} = m_{\mathrm{I}}\, g_{\mathrm{II}}/g_{\mathrm{I}}$ dagegen geht der Quotient der beiden g-Werte ein.

Die Zahl der Koinzidenzen K_i kann aus Fig. 10 abgelesen werden. Die untere Plateauhöhe gibt nach Abzug des Untergrundes unmittelbar K_{II} für eine Diskriminierung im γ-Kanal (E_D) von 200 bis 320 keV. Um nach Gleichung (4) k_{II} ausrechnen zu können, muss für $A_{\gamma,\mathrm{II}}$ ein Wert eingesetzt werden, bei dessen Bestimmung innerhalb des gleichen Intervalles diskriminiert wurde (Tabelle 1, $A_{\gamma,\mathrm{II}}$ für $E_D = 300$ keV)**). Zur Bestimmung von k_{I} steht die mittlere Höhe des oberen Plateaus über dem Untergrund (Fig. 10) zur Verfügung. Diese Höhe gibt uns die Summe von $K_{\mathrm{I}} + K_{\mathrm{II}}$ bei einer mittleren Diskriminierung von $E_D = 86$ keV an. Dementsprechend sind für $A_{\gamma,\mathrm{I}}$ und $A_{\gamma,\mathrm{II}}$ (Tab. 1) die Werte für $E_D = 86$ keV zu benützen.

Bezeichnet man die Werte für $A_{\gamma,i}$ und K_i bei $E_D = 300$ keV mit $A'_{\gamma,i}$ resp. K'_i, bei $E_D = 86$ keV mit $A_{\gamma,i}$ und K_i so wird:

$$k_{\mathrm{II}} = \frac{K'_{\mathrm{II}}}{m_{\mathrm{I}}\, A'_{\gamma,\mathrm{II}}} \cdot \frac{g_{\mathrm{I}}}{g_{\mathrm{II}}} \tag{5}$$

Beachtet man, dass $K_{\mathrm{II}} = K'_{\mathrm{II}}\, A_{\gamma,\mathrm{II}}/A'_{\gamma,\mathrm{II}}$ ist, so wird

$$k_{\mathrm{I}} = \frac{K_{\mathrm{I}}}{m_{\mathrm{I}}\, A_{\gamma,\mathrm{I}}} = \frac{(K_{\mathrm{I}} + K_{\mathrm{II}}) - K'_{\mathrm{II}} \dfrac{A_{\gamma,\mathrm{II}}}{A'_{\gamma,\mathrm{II}}}}{m_{\mathrm{I}}\, A_{\gamma,\mathrm{I}}}. \tag{6}$$

Das Intensitäts-Verhältnis (q) der nicht konvertierten Anteile der beiden γ-Linien beträgt:

$$q = \frac{J(\gamma_{\mathrm{I}})}{J(\gamma_{\mathrm{II}})} = \frac{\mathrm{N}_{235}\, g_{\mathrm{I}}\, k_{\mathrm{I}}}{\mathrm{N}_{235}\, g_{\mathrm{II}}\, k_{\mathrm{II}}}.$$

Setzen wir hier die Ausdrücke für k_{I} und k_{II} aus (5) und (6) ein, so wird:

$$q = \frac{A'_{\gamma,\mathrm{II}}\,(K_{\mathrm{I}} + K_{\mathrm{II}})}{A_{\gamma,\mathrm{I}}\, K'_{\mathrm{II}}} - \frac{A_{\gamma,\mathrm{II}}}{A_{\gamma,\mathrm{I}}}. \tag{7}$$

---

*) Das entsprechende Mischungsverhältnis (relative Anzahl der Atome) der Isotopen beträgt: U^{234} 0,033%; U^{235} 5,70%; U^{238} 94,3%.

**) Die stillschweigend gemachte Voraussetzung, dass der γ-Übergang II stets direkt in den Grundzustand führt, wird durch das Resultat $\delta_{\mathrm{II}} = 0$ nachträglich gerechtfertigt.

Die Zahlenwerte ergeben sich hieraus zu:

$$k_{\mathrm{I}} = 0{,}89_4 \pm 0{,}090;\ k_{\mathrm{II}} = 1{,}33 \pm 0{,}24;\ q = 13{,}7 \pm 2{,}2.$$

Da GHIORSO keine Fehlerangaben für seine g-Werte (Fig. 1) macht*), ist die Unsicherheit von $g_{\mathrm{I}}/g_{\mathrm{II}}$ in der Fehlerangabe für k_{II} nicht enthalten. In die Berechnung von k_{I} und q gehen die g-Werte nicht ein. Die üblichen Konversionskoeffizienten $\delta = (1/k) - 1$ ergeben sich zu $\delta_{\mathrm{I}} = 0{,}12$ und $\delta_{\mathrm{II}} = 0$, wenn $\delta < 0$ definitionsgemäss ausgeschlossen wird. Die Fehler-Schranken für die δ-Werte entnimmt man am besten den für die k-Werte angegebenen mittleren Fehlern.

2.35. *Zusammenfassung der Resultate.*

a) Die nach dem Zerfallsschema von GHIORSO (Fig. 1) zu erwartenden γ-Linien und α-γ-Koinzidenzen konnten nachgewiesen werden. Andere Linien und Koinzidenzen wurden nicht festgestellt.

b) Die in Koinzidenz gemessenen α- und γ-Energien stimmen gut mit den Werten von GHIORSO überein (Tab. 2).

Tabelle 2.

Vergleich der in Koinzidenz gemessenen Energiewerte der α- und γ-Strahlung des U^{235} (vorliegende Arbeit) mit den Werten von GHIORSO[7]).

Teilchen	Energie (E)	
	vorliegende Arbeit	GHIORSO[7])
α_0	$E(\alpha_{\mathrm{I}}) + E(\gamma_{\mathrm{I}}) = 4{,}567 \pm 0{,}028$ MeV	4,58 MeV
	$E(\alpha_{\mathrm{II}}) + E(\gamma_{\mathrm{II}}) = 4{,}542 \pm 0{,}054$ MeV	
α_{I}	$4{,}390 \pm 0{,}015$ MeV	4,40 MeV
α_{II}	$4{,}175 \pm 0{,}044$ MeV	4,20 MeV
γ_{I}	177 ± 23 keV	$E(\alpha_0) - E(\alpha_{\mathrm{I}}) = 180$ keV
γ_{II}	367 ± 31 keV	$E(\alpha_0) - E(\alpha_{\mathrm{II}}) = 380$ keV

c) Die Konversion der beiden γ-Linien sowie das Intensitätsverhältnis ihrer nicht konvertierten Anteile konnte gemessen werden (Zahlenwerte am Schluss von Abschnitt 2.34).

d) Unsere Prüfung auf α-Feinstruktur-Komponenten des U^{235} mit Hilfe von α-γ-Koinzidenzen beschränkt sich auf γ-Energien grösser als 53 keV. Messungen wurden allerdings bis zu 40 keV ausgeführt (Fig. 10). Bei 53 keV treten aber die α-γ-Koinzidenzen des U^{234} auf, das 82% der Aktivität unseres Präparates ausmacht.

*) Siehe Bemerkung am Schluss der Arbeit.

3. Messung des Verhältnisses der α-Aktivität von U^{235} und U^{238} resp. U^{234} im natürlichen Isotopengemisch.

3.1. *Einleitung.*

Eine Bestimmung des Aktivitätsverhältnisses von U^{235} zu U^{238} resp. U^{234} aus dem α-Spektrum des natürlichen Isotopengemisches liefert, wegen der α-Feinstruktur des U^{235} und des begrenzten Auflösungsvermögens, nur das Intensitätsverhältnis folgender Liniengruppen:

$$(\alpha^{238} + \alpha_{II}^{235}); \quad \alpha_{I}^{235}; \quad (\alpha^{234} + \alpha_{0}^{235}).$$

Hierbei kennzeichnet der obere Index das Uranisotop (234, 235, 238) und der untere Index (0, I, II) die Feinstruktur-Komponente der α^{235}-Linie.

Nun erscheint aber im α-Spektrum des natürlichen Urans die α_{I}^{235}-Linie eingebettet zwischen den 21mal intensiveren Gruppen der α^{234}- und α^{238}-Linien. In den bisher publizierten Arbeiten[8][9]) genügte die Auflösung der α-Spektren nicht, um die α_{I}^{235}-Linie völlig separiert erscheinen zu lassen. Die Unsicherheit in der gegenseitigen Linienabgrenzung ergab für das Intensitätsverhältnis $J(\alpha_{I}^{235})/J(\alpha^{238} + \alpha_{II}^{235})$ Fehler von 4—10%.

Um die Messgenauigkeit zu steigern, war es deshalb neben der Verkleinerung des statistischen Fehlers notwendig, durch geeignete Massnahmen das α-Spektrum besser aufzulösen.

3.2. *Apparatur.*

Die Registrierung des α-Spektrums des natürlichen Isotopengemisches von Uran erfolgte mit Hilfe von Ionisationskammer mit Ionensammlung, Proportionalverstärker und 19-Kanal-Impulsspektrograph. Die Einrichtungen sind anderorts eingehend beschrieben worden[19][20][21]). Die Ionisationskammer mit parallelen Platten (Plattendistanz = 1 cm, Kammerspannung = 4,8 kV) war mit 6 ata Reinargon und 0,5% CO_2 gefüllt. Das flächenhafte Uranpräparat wurde in der Mitte der Auffängerplatte (Durchmesser 4 cm) aufgetragen und so dimensioniert, dass beim gewählten Gasdruck keine α-Teilchen das Randfeld der Ionisationskammer erreichten. Bei einer Sammelzeit der positiven Ionen von ca. 10^{-3} s wurden die Zeitkonstanten der beiden begrenzenden Filter des RC-RC-Verstärkers auf $3{,}2 \cdot 10^{-3}$ s eingestellt. Das ballistische Defizit berechnet sich daraus bei Annahme eines momentan ansteigenden und dann linear abnehmenden Eingangsimpulses zu rund 0,3%[22]). Bei einer Anstiegszeit der Impulse am Eingang des Impulsspektrographen von $1{,}8 \cdot 10^{-3}$ s wurde die Ladezeit für die Ladestufe zu $2{,}5 \cdot 10^{-3}$ s

bemessen, sodass bei der registrierten Stosszahl/Min. nur 0,4% der Impulse durch Überlagerung in falsche Kanäle fielen. Damit nach jedem Impuls, vor der Registrierung des nächsten, alle Spannungen ihre Ruhewerte wieder genügend genau erreichen konnten, wurde eine Sperrzeit von 0,8 s eingeschaltet. Der dadurch bedingte Zählverlust betrug 42%.

3.3. *Verbesserung der Auflösung des Uran-α-Spektrums.*

Die Verbreiterung der Linien des α-Spektrums rührte neben den elektronischen Effekten (Widerstandsrauschen, Schroteffekt, Funkeleffekt) in erster Linie von der Selbstabsorption der verwendeten Uranpräparate her. Der Einfluss der Streuung des ballistischen Defizits und der Rekombination wegen der unterschiedlichen Strahl-Richtung der α-Teilchen im elektrischen Feld der Ionisationskammer war im Vergleich zur Verschmierung durch die Selbstabsorption in der Quelle um eine Grössenordnung kleiner.

In einer Arbeit von Haeberli u. a.[19]) ist die Linienform als Funktion der Dicke des U_3O_8-Präparates berechnet worden. Baldinger und Huber[8]) verwendeten von Haeberli[19]) hergestellte Uranquellen von 30 keV Dicke. Diese Quellen ergaben am Ort der α_I^{235}-Linie noch einen „Untergrund", herrührend von der α^{234}-Linie, der fast die Hälfte der Intensität der α_I^{235} Linie ausmachte. Für die vorliegende Arbeit wurden daher noch dünnere Quellen hergestellt und ausserdem deren α-Strahlung kollimiert. Diese Massnahmen reduzierten allerdings die pro Min. registrierte Impulszahl um 90%, sodass entsprechend längere Messzeiten zur Erreichung der notwendigen statistischen Genauigkeit erforderlich wurden.

Die Herstellung der Strahlungsquellen aus Uran im natürlichen Isotopengemisch erfolgte nach dem in Abschnitt 2.22 beschriebenen Verfahren mit folgenden Abänderungen:

Als Elektrolyt diente eine 0,1%ige Uranylnitratlösung mit $p_H = 5{,}7$. Die Ausscheidungszeit war 6 Min. Die auf poliertem Pt-Blech ausgeschiedenen U_3O_8-Quellen besassen 20—25 keV Dicke (blauviolette Farbe dünner Blättchen).

Als Kollimator diente eine Siebplatte aus Messing mit 62 Löchern vom Lochdurchmesser 2 mm und der Lochtiefe 1 mm, die direkt auf das Präparat gelegt wurde. Flach austretende α-Teilchen, für die der Winkel zwischen der Strahlenrichtung und der Normalenrichtung auf der Präparatebene grösser als 63,5° ist, werden damit abgeschirmt. Infolge dieser selektiven Ausmerzung von Teilchen mit grossem Energiedefizit, erhält man nun α-Linien, deren Flanken gegen kleinere Energien wesentlich steiler abfallen als ohne Kollimator. Anderseits stört aber der Kollimator das homogene Feld in

der Ionisationskammer. Im folgenden soll der Einfluss dieser Feldstörung auf die Linienform abgeschätzt werden.

Zunächst musste die Verzerrung des homogenen elektrischen Feldes durch eine zylindrische Vertiefung in der Auffängerplatte untersucht werden. Für eine Näherungsrechnung genügt es, die Frage als ebenes Problem zu behandeln, d. h. den Feldverlauf und die α-Strahl-Richtungen nur in einer Ebene durch die Zylinderachse zu betrachten (Fig. 11). Für vier verschiedene Teilgebiete *a—d* des Kollimatorbodens und geeignet gewählte Winkelbereiche $\Delta\varphi$ wurde die Feldstärke nach Betrag und Richtung längs den 5 mm langen Bahnen der α-Teilchen verfolgt. Entsprechend diesen variablen Werten der Feldstärke wurde das Sättigungsdefizit (unter Berücksichtigung des jeweiligen Winkels zwischen α-Strahl und Feldrichtung) längs der Bahn eines α-Teilchens bestimmt. Die Häufigkeitsverteilung des Betrages des Sättigungsdefizites für die verschiedenen Winkelbereiche und die Teilgebiete *a—d* ergibt unmittelbar die Form der α-Linie im Falle des ebenen Problems. Der Übergang zum räumlichen Problem erfolgte durch Zuordnung entsprechender Gewichte zu den Teilflächen *a—d* des Kollimatorbodens. Auf diese Weise wurde das Spektrum einer monochromatischen homogenen Flächenquelle, die sich auf dem Boden des Kollimatorloches befindet, berechnet. Das Ergebnis ist in Fig. 12, Kurve *a*, dargestellt. Die aus dem benutzten Kollimator austretende Strahlung ergibt sich zu 19% der Gesamtstrahlung, was mit einem von Ghiorso u. a.[23]) experimentell gefundenen Wert von 16,6% gut übereinstimmt.

Fig. 12, Kurve *b*, zeigt die Linienform, wie sie sich unter ausschliesslicher Berücksichtigung von Widerstandsrauschen*) und Selbstabsorption der Quelle berechnet[19]). Der Vergleich mit Fig. 12, Kurve *a*, zeigt, dass der Einfluss der Feldinhomogenität im Kollimator im Vergleich zu den anderen Effekten nur unwesentlich zur Linienverbreiterung beiträgt, womit auch die Berechtigung seiner genäherten Berechnung dargetan ist.

In Fig. 13 werden unter Berücksichtigung von Selbstabsorption und Widerstandsrauschen, die Linienform ohne Kollimator (Kurve *a*) und mit Kollimator (Kurve *b*) verglichen. Die Punkte geben eine Messung an der α-Linie des U^{238} wieder. Die ausgezogenen Kurven sind berechnet und stimmen, nach Anpassung im Linienmaximum, befriedigend mit der Messung überein. Die gemessene Halbwertsbreite der Linie beträgt 1,8%. Entscheidend ist, dass mit Kollimator in einem Abstande von 180 keV vom Linienmaximum, was der

*) Das Widerstandsrauschen allein entsprach einer Halbwertsbreite von 67 keV.

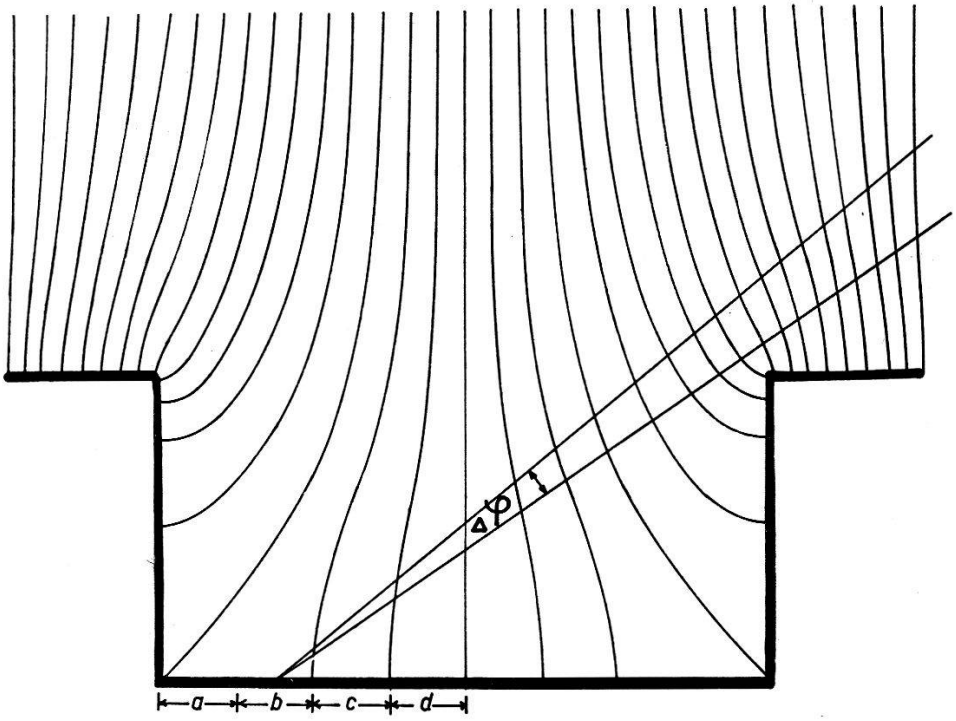

Fig. 11.
Feldverlauf im Kollimator.
Lochtiefe 1 mm, Lochdurchmesser 2 mm.

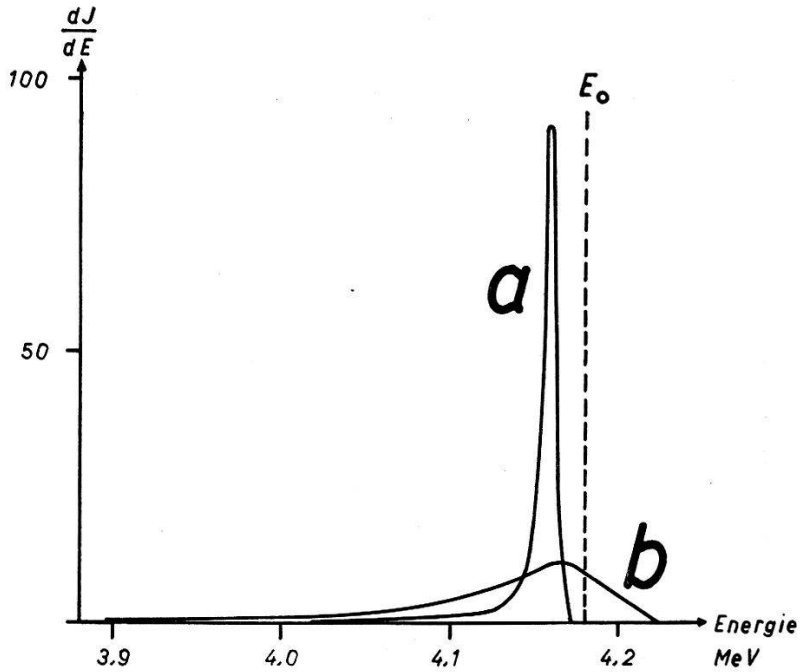

Fig. 12.
Berechnung der Linienform und der Lage des Maximums einer monochromatischen α-Linie der Energie E_0. Berücksichtigt wurde der Einfluss der Feldinhomogenität im Kollimator (Kurve *a*), des Widerstandsrauschens und der Selbstabsorption in der Quelle (Kurve *b*). Die Intensität (*J*) der beiden Linien unter den Kurven *a* und *b* ist gleich gross. Als Beispiel dient die α-Linie von U^{238}.

halben Energiedifferenz zwischen den α^{234}- und $\alpha_{\mathrm{I}}^{235}$-Linien entspricht, die Intensität völlig auf Null abgesunken ist. Ohne Kollimator dagegen würde die α^{234}-Linie noch am Ort der $\alpha_{\mathrm{I}}^{235}$-Linie einen Untergrund liefern, dessen Intensität die Hälfte des Maximums der $\alpha_{\mathrm{I}}^{235}$-Linie ausmacht.

Ein weiterer Vorteil des Kollimators ist durch den mittleren Raumwinkel von nur 8,3% bedingt, den ein Loch unseres Kollimators für einen Punkt der Uran-Quelle darstellt. Wenn nämlich von Konversionselektronen begleitete α-Teilchen auftreten, so können bei einer

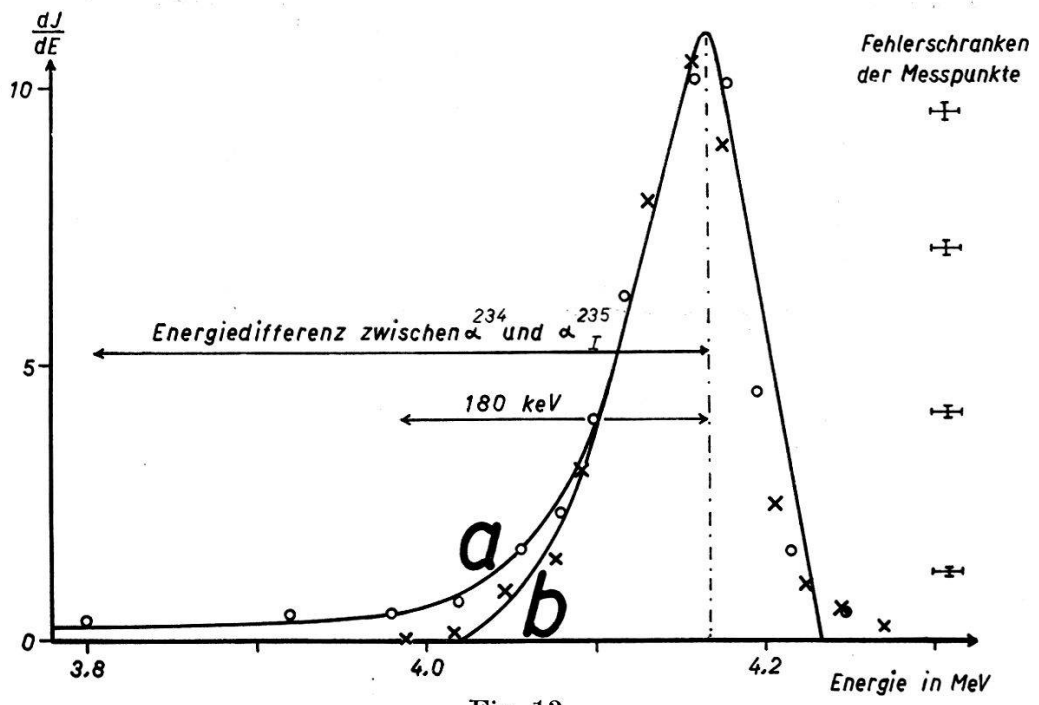

Fig. 13.
Linienform mit und ohne Kollimator am Beispiel der α-Linie von U^{238}.
Kurve *a* zeigt die Linienform ohne Kollimator unter Berücksichtigung von Widerstandsrauschen und Selbstabsorption in der Quelle, Kurve *b* dasselbe mit Kollimator. Die Punkte sind gemessen, die Kurven sind berechnet. Die gemessene Halbwertsbreite der Linie beträgt 1,8%. ○ Messpunkte ohne Kollimator. × Messpunkte mit Kollimator.

2π-Geometrie der Ionisationskammer die Hälfte dieser α-Teilchen in ihrem Energiewert durch die gleichzeitige Ionisation der Konversions-Elektronen verfälscht werden. Mit unserem Kollimator sinkt dieser Anteil auf 8,3%.

3.4. *Messungen.*

Um die Intensitätsverhältnisse $J(\alpha_{\mathrm{I}}^{235})/J(\alpha^{238} + \alpha_{\mathrm{II}}^{235})$ resp. $J(\alpha_{\mathrm{I}}^{235})/J(\alpha^{234} + \alpha_{0}^{235})$ auf 2% genau zu bestimmen, wurden rund 4000 Impulse der $\alpha_{\mathrm{I}}^{235}$-Linie und total $2 \cdot 10^5$ α-Impulse des natürlichen Urans ausgemessen. Wegen der dünnen Uranquelle, des Kollimators und der langen Sperrzeit konnten nur 31 α-Teilchen pro Min. ge-

messen werden, sodass sich die totale Messzeit auf 105 h erstreckte. Eine zusätzliche Verschmierung der α-Linien durch langfristige Schwankungen des Verstärkers und der Kanalbreiten des 19-Kanal-Impulsspektrographen wurde vermieden, indem die Registrierung in 184 Teilmessungen von 30—40 Min. Dauer erfolgte. Vor und nach jeder Teilmessung kontrollierten wir die Diskriminierung der Kanäle mit Hilfe von Testimpulsen. So konnten die Kanalbreiten von 45 keV auf 0,4 keV genau eingestellt und gehalten werden.

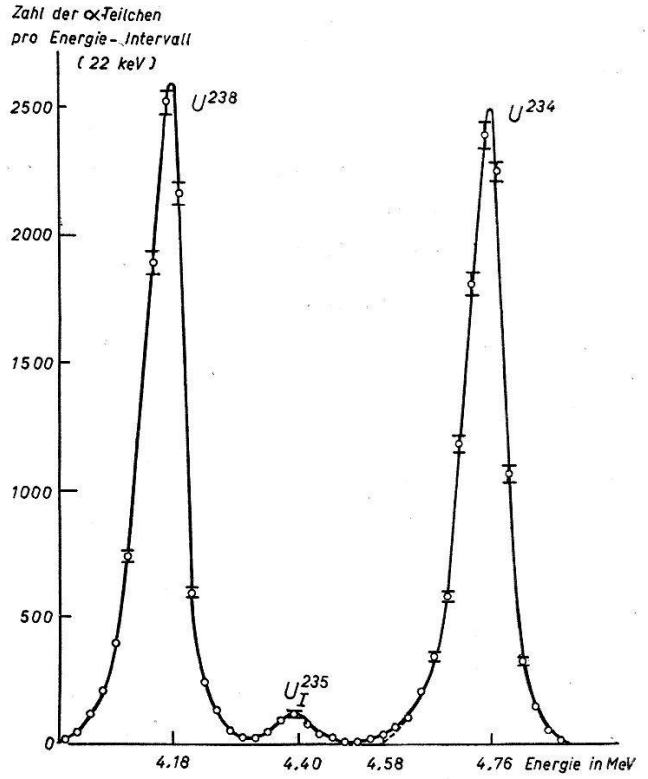

Fig. 14.

Spektrum der α-Linien des Urans im natürlichen Isotopengemisch. Zur Darstellung dieser Kurve wurden nur rund 10% des gesamten statistischen Materials verwendet.

Zur Summierung der 184 Teilmessungen, bei denen die Gesamtheit der Kanäle von Messung zu Messung absichtlich etwas verschoben wurde*), waren Fixpunkte auf der Energieskala notwendig. Dazu eignen sich die Energiewerte der α^{238}- und α^{234}-Linien. Es gelang, die 184 Teilmessungen mit einer Unsicherheit in der Energieskala von nur ± 9 keV zu superponieren, denn die Lage der Linien-Maxima konnte in den einzelnen Teilmessungen mit Hilfe des Verlaufes der Linienflanken bis auf 0,2 Kanalbreiten festgelegt werden. Der Gesamtverlauf des Spektrums wird in Fig. 14 durch eine Überlagerung von 20 Teilmessungen dargestellt. Es war nämlich unnötig, die Superposition sämtlicher Teilmessungen über das ganze

*) Entspricht einer feineren Kanalunterteilung.

α-Spektrum hin differentiell durchzuführen. In denjenigen Intervallen der Energie-Achse, die von vorneherein eindeutig einer der α-Linien-Gruppen zugeordnet sind, konnte man sich mit einer integralen Superposition über das fragliche Energie-Intervall begnügen.

Das Spektrum zeigt eine gute Separierung der $\alpha_{\mathrm{I}}^{235}$-Linie von den beiden benachbarten Liniengruppen. Die noch vorhandenen geringfügigen Überlappungen konnten flächenmässig auf die drei Liniengruppen aufgeteilt werden, indem die ungestörte Linienform, wie sie die energiereichere Flanke der α^{234}-Linie zeigt, auf die entsprechenden Flanken der $(\alpha^{238}+\alpha_{\mathrm{II}}^{235})$-Gruppe und der $\alpha_{\mathrm{I}}^{235}$-Linie übertragen wurde. Die dabei entstehenden Abgrenzungsfehler waren im Vergleich zu den statistischen Fehlern durchwegs klein, so dass eine weitere Verbesserung des Auflösungsvermögens die Messgenauigkeit nicht mehr erhöhen würde. Tabelle 3 gibt die Ergebnisse der relativen Intensitätsmessung der drei Liniengruppen wieder.

Tabelle 3.

Messung der relativen Intensität der drei separierbaren Liniengruppen im α-Spektrum des Uran im natürlichen Isotopengemisch.

Bezeichnung der Linien	Gemessene Impulszahl J	Abgrenzungsfehler	Statitischer Fehler	Totaler Fehler	
				absolut	relativ %
$\alpha^{238}+\alpha_{\mathrm{II}}^{235}$	95115	$\pm$ 18,5	$\pm$ 309	$\pm$ 310	0,33%
$\alpha_{\mathrm{I}}^{235}$	3880	$\pm$ 20,8	$\pm$ 62,3	$\pm$ 66	1,7 %
$\alpha^{234}+\alpha_{0}^{235}$	95491	$\pm$ 2,3	$\pm$ 310	$\pm$ 310	0,33%

4. Ergebnisse.

Aus den relativen Intensitäten der in Tabelle 3 aufgeführten Liniengruppen lassen sich die gesuchten Intensitätsverhältnisse

$$V=\frac{J(\alpha_{\mathrm{total}}^{235})}{J(\alpha^{234})}=\frac{J(\alpha_{\mathrm{total}}^{235})}{J(\alpha^{238})}$$

berechnen, wenn man die von Ghiorso[7]) angegebenen Häufigkeitsverhältnisse $g_0:g_{\mathrm{I}}:g_{\mathrm{II}}$ der einzelnen α-Komponenten des U^{235} (Fig. 1) verwendet*). V ergibt sich zu:

$$V=\frac{J(\alpha_{\mathrm{I}}^{235})\cdot\frac{1}{g_{\mathrm{I}}}}{J(\alpha^{238}+\alpha_{\mathrm{II}}^{235})-J(\alpha_{\mathrm{I}}^{235})\cdot\frac{g_{\mathrm{II}}}{g_{\mathrm{I}}}}=0{,}0478\pm0{,}0010\,,$$

*) Ghiorso[4])[7]) vermutet die Existenz einer weiteren Komponente mit 4,47 MeV Energie des α-Teilchens und ca. 3% Häufigkeit. Weder Ghiorso noch wir können diese Linie von der Linie $\alpha_{\mathrm{I}}^{235}$ trennen. Es muss nur darauf geachtet werden, dass für g_{I} der Wert 85,6% (Summe der beiden Linien) und nicht die Zahl 83% (α_{I} allein) benützt wird.

bzw.

$$V = \frac{J(\alpha_{\mathrm{I}}^{235}) \cdot \frac{1}{g_{\mathrm{I}}}}{J(\alpha^{234} + \alpha_0^{235}) - J(\alpha_{\mathrm{I}}^{235}) \cdot \frac{g_0}{g_{\mathrm{I}}}} = 0{,}0477 \pm 0{,}0010\,.$$

Die beiden V-Werte stimmen gut überein. Der Mittelwert beträgt

$$V = 0{,}04776 \pm 0{,}00094.$$

Da Ghiorso über die g-Werte keine Fehlerangaben macht, ist die Unbestimmtheit von $g_{\mathrm{I}} = 0{,}856$ im Fehler von V nicht berücksichtigt*). Aus den Messungen von Sayac[9]) lässt sich mit Hilfe der Daten von Ghiorso V zu $0{,}0479 \pm 0{,}0020$ berechnen, was mit unseren Ergebnissen übereinstimmt.

Aus dem Aktivitätsverhältnis V lässt sich gemäss Gleichung (2) die Halbwertszeit des U^{235} berechnen. Hierbei wird für das Mischungsverhältnis $N(U^{238})/N(U^{235})$ nach Fleming[2]) der Wert 138 ± 1 und für λ_{238} nach Kovarik und Adams[3]) der Wert $1{,}538 \cdot 10^{-10} \pm 0{,}3\,\%$ Jahre^{-1} verwendet. Tabelle 4 enthält unser Resultat neben

Tabelle 4.
Halbwertszeit von U^{235}.

Die Resultate von Nier und Sayac wurden, wo erforderlich, auf Grund der neueren Bestimmungen von $N(U^{238})/N(U^{235})$, λ_{238} und der α-Feinstruktur des U^{235} umgerechnet.

Autoren	Methode	$t_{1/2}$ in Jahren
Nier[1]) 1939	Alter von Uranerzen	$(7{,}10 \pm 0{,}21) \cdot 10^8$
Sayac[9]) 1951	Aktivitätsvergleich mit U^{234}	$(6{,}82 \pm 0{,}29) \cdot 10^8$
Fleming[2]) 1952	Absolute Aktivitätsmessung	$(7{,}13 \pm 0{,}16) \cdot 10^8$
vorliegende Arbeit 1956	Aktivitätsvergleich mit U^{234} und U^{238}	$(6{,}84 \pm 0{,}15) \cdot 10^8$

den Ergebnissen anderer Autoren, deren Messungen, wo erforderlich, auf Grund der neuen Zahlenwerte für $N(U^{238})/N(U^{235})$, λ_{238} und der g-Werte von Ghiorso umgerechnet wurden. Die drei grundsätzlich verschiedenen Methoden ergaben innerhalb der Messgenauigkeit dieselben Zahlenwerte.

Unmittelbar vor der Drucklegung dieser Arbeit erhielten wir von Ghiorso (Berkeley) die briefliche Mitteilung, dass dort die Gruppe Pilger, Asaro und Perlmann eine Neubestimmung der α-Feinstruktur des U^{235} durchführt, und zwar mit Hilfe eines doppelt-

*) Der Einfluss von Fehlern in g_0 und g_{II} ist vernachlässigbar. Der Fehler in g_{I} ist quadratisch zum Fehler in V zu addieren. Da der letztere 2% beträgt, sind Fehler in g_{I}, die $\leqq 1\%$ sind, vernachlässigbar.

fokussierenden magnetischen Spektrometers. Die ersten, allerdings noch nicht zur Publikation reifen Resultate mit diesem hochauflösenden Instrument zeigen, dass die α_0- und die α_I-„Linie" des U^{235} selbst wieder je aus einer Liniengruppe besteht. Im weiteren ist eine verbesserte Neubestimmung der Werte g_0, g_I und g_{II} zu erwarten, sodass diejenigen Ergebnisse der vorliegenden Arbeit, die sich auf die g-Werte nach GHIORSO[7]) aus dem Jahre 1951 stützen, eventuell umgerechnet werden müssen.

Literaturverzeichnis.

1) A. O. NIER, Phys. Rev. **55**, 150, 153 (1939).
2) E. H. FLEMING, Jr., A. GHIORSO, B. B. CUNNINGHAM, Phys. Rev. **88**, 642 (1952).
3) A. F. KOVARIK, I. ADAMS, Phys. Rev. **98**, 46 (1955).
4) Rev. Mod. Phys. **25**, 469 (1953).
5) F. ASARO, „The Complex alpha Spectra of the Heavy Elements", United States Atomic Energy Commission Report UCRL - 2180, Oak Ridge, 1953.
6) G. VALLADAS, comptes rendus **237**, 1673 (1953).
7) A. GHIORSO, Phys. Rev. **82**, 979 (1951).
8) E. BALDINGER und P. HUBER, Helv. Phys. Acta **22**, 362 (1949).
9) G. J. SAYAC, Comptes rendus **232**, 2091 (1951).
10) F. L. CLARK, H. J. SPENCER-PALMER and R. N. WOODWARD, Brit. Atomic Energie Projects, Report BR - 521, 522 (1944).
11) R. L. MACKLIN, Phys. Rev. **76**, 595 (1949).
12) B. F. SCOTT, NNES - PPR **17**B, 638 (1952).
13) P. R. BELL, R. C. DAVIS, J. E. FRANCIS and J. M. CASSIDY, reported in Oak Ridge National Laboratory, Unclassified Report ORNL - 1164 (April 1952).
14) D. MAEDER, Helv. Phys. Acta **20**, 139 (1947).
15) J. TEILLAC, Ann. phys. **7**, 396 (1952).
16) D. MAEDER, Helv. Phys. Acta **23**, Supplementum III, 175 (1950).
17) R. L. SHIPP, Rev. of Sc. Instr. **23**, 773 (1952).
18) D. MAEDER, R. MÜLLER, V. WINTERSTEIGER, Helv. Phys. Acta **27**, 3 (1954).
19) W. HAEBERLI, P. HUBER und E. BALDINGER, Helv. Phys. Acta **26**, 145 (1953).
20) E. BALDINGER, W. HÄLG, P. HUBER und A. STEBLER, Helv. Phys. Acta **19**, 423 (1946).
21) E. BALDINGER und R. CASALE, Helv. Phys. Acta **21**, 172 (1948).
22) E. BALDINGER und W. HAEBERLI, Ergebnisse der exakten Naturwissenschaften **27**, 248 (1953).
23) A. GHIORSO, A. H. JAFFEY, H. P. ROBINSON, and B. B. WEISSBOURD, „The Transuranium Elements", Part. II, 1267, McGraw-Hill, New York 1949.
24) S. A. E. JOHANSSON, Arkiv för Fysik **10**, 97 (1956).