Der Zerfall des Mo^99 und die Isometrie des Tc^99

Autor(en): **Medicus, H. / Maeder, D. / Schneider, H.**

Objekttyp: **Article**

Zeitschrift: **Helvetica Physica Acta**

Band (Jahr): **24 (1951)**

Heft I

PDF erstellt am: **24.04.2024**

Persistenter Link: https://doi.org/10.5169/seals-112208

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.
Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.
Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

Haftungsausschluss

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

Ein Dienst der *ETH-Bibliothek*
ETH Zürich, Rämistrasse 101, 8092 Zürich, Schweiz, www.library.ethz.ch

http://www.e-periodica.ch

Der Zerfall des Mo^{99} und die Isomerie des Tc^{99}

von **H. Medicus, D. Maeder** und **H. Schneider** (ETH. Zürich).

(2. VIII. 1950.)

Zusammenfassung. Der Zerfall des Mo^{99}, das durch Bestrahlung mit langsamen Neutronen aus Mo^{98} entsteht, wurde mittels verschiedener Methoden untersucht und ein Termschema (Fig. 1) aufgestellt. Es zeigt sich, dass ca. 87% der β-Zerfälle über ein isomeres Niveau im Tc führen. Die Energie des isomeren Überganges beträgt nur 1,8 keV. Diesem folgt die bisher als isomerer Übergang angesprochene, nun aber als magnetische Dipolstrahlung erkannte γ-Strahlung von 141 keV Energie. Bei denjenigen Zerfällen des Mo, die nicht über den isomeren Zustand führen, werden γ-Quanten von 728 und 141 keV in Kaskade emittiert. Bei der Umwandlung werden ausserdem noch Quanten von 182 und 360 keV Energie nachgewiesen.

1. Einleitung.

Seit den eingehenden Untersuchungen von SEABORG und SEGRÈ[1]) ist bekannt, dass Mo^{99} sich durch β-Zerfall in Tc^{99} umwandelt. Die Maximalenergie der β-Strahlung wurde von verschiedenen Forschern[1])[2])[3]) gemessen. Ihre Angaben variieren zwischen 1,0 und 1,5 MeV. Beim Zerfall wird teilweise ein γ-Quant emittiert, dessen Energie zu 0,75[2]) und zu 0,71[3]) MeV bestimmt wurde. Mit dieser Linie koinzidieren β-Partikel. SEABORG und SEGRÈ hatten ausserdem erkannt, dass der β-Zerfall des Mo^{99} zum Teil zu einem isomeren Zustand des Tc^{99} von 6 Stunden Halbwertszeit führt. Als isomerer Übergang wurde eine Konversionslinie von 136 keV angesehen und vermutet, dass die mit derselben Periode abklingende unkonvertierte γ-Strahlung von grössenordnungsmässig gleicher Energie in Kaskade emittiert werde. MANDEVILLE und SCHERB[3]) konnten aber keine Koinzidenzen dieser γ-Strahlung mit den erwähnten Konversionselektronen feststellen, woraus sie schlossen, dass es sich hierbei einfach um den konvertierten und den unkonvertierten Anteil des isomeren Überganges handle. Diese Annahme steht aber in Widerspruch zu der bekannten Tatsache, dass isomere Übergänge solcher Halbwertszeit und Energie praktisch total konvertiert sind. Im weiteren zeigt es sich, dass in den graphischen Darstellungen von Übergangsenergie und Halbwertszeit der bekannten Isomere nach WIEDENBECK[4]) und nach

AXEL und DANCOFF[5]) das Tc^{99*} mit den oben erwähnten Daten sehr stark aus der deutlichen Gruppierung der Isomere herausfällt. Dies waren die Gründe, die uns veranlassten, den Zerfall des Mo^{99} und des von ihm gebildeten Tc^{99} genauer zu untersuchen.

Am günstigsten lässt sich Mo^{99} durch Bestrahlung von Molybdän mit langsamen Neutronen erzeugen. In der BEPO-Pile des A.E.R.E. in Harwell (England) wurde daher mehrere Male MoO_3-Pulver während 5 Tagen mit langsamen Neutronen bestrahlt. Durch den Neutroneneinfang entstehen aus den Isotopen 94, 95, 96 und 97

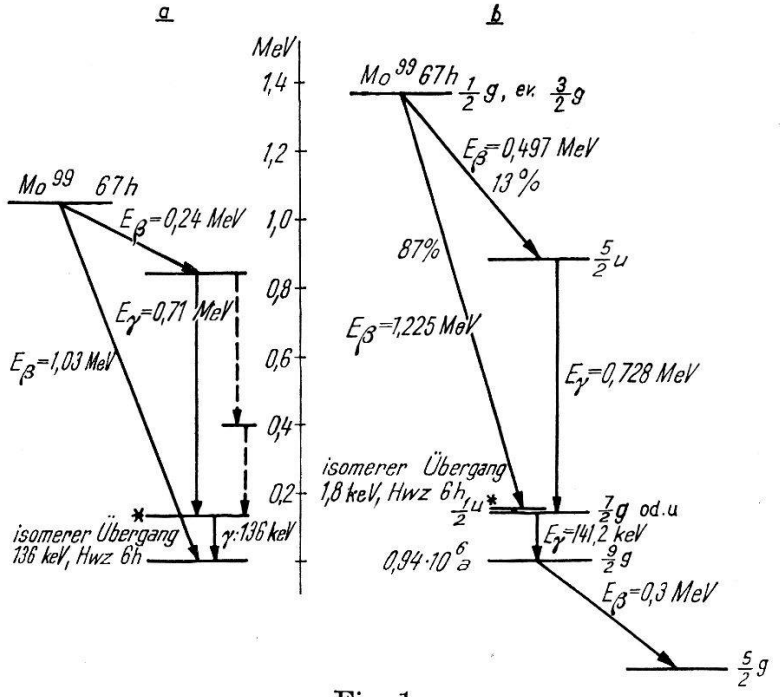

Fig. 1.

Zerfallsschema des Mo^{99}

a) nach MANDEVILLE und SCHERB, b) nach unsern Untersuchungen.

wiederum stabile Isotope (mit dem Vorbehalt, dass isomere Zustände in den entstehenden Isotopen angeregt werden könnten; allerdings wurde hiervon nichts beobachtet). Der n, γ-Prozess am Mo^{100} ergibt das kurzlebige Mo^{101} mit 14,6 Min. Halbwertszeit, während das Mo^{92} einen sehr kleinen Einfangsquerschnitt für Neutronen zu haben scheint, was mit der abgeschlossenen Neutronenschale dieses Isotops erklärt werden kann. Die einzige in nennenswertem Ausmass auftretende Aktivität ist diejenige des Mo^{99} mit seiner Tochtersubstanz Tc^{99}. Der Grundzustand dieses letzteren besitzt eine Halbwertszeit von $0{,}9 \cdot 10^6$ Jahren. Die davon herrührende Radioaktivität beeinflusst unsere Messungen in keiner Weise.

Durch unsere Untersuchungen gelangten wir zu dem in Fig. 1 wiedergegebenen Termschema. Ihm ist dasjenige, das MANDEVILLE und SCHERB[3]) aufgestellt haben, gegenübergestellt. Das grundsätzlich Neue an dem unsern ist, dass die Energie des isomeren Überganges nur 1,8 keV beträgt. Es stützt sich auf Messungen der Elektronen- und γ-Strahlung in magnetischen Halbkreis- und Linsenspektrographen, β-β, β-γ- und γ-γ-Koinzidenzmessungen, Absorptionsmessungen, Messungen des zeitlichen Verlaufes der Aktivität und Untersuchungen im Proportionalzählrohr. Diese Mannigfaltigkeit der Untersuchungsmethoden, die erst das Bild des Zerfalles rundet, liess es angezeigt erscheinen, für die Darstellung das Termschema vorwegzunehmen und es bei der Besprechung der einzelnen Messergebnisse jeweils zu verifizieren. Spins und Paritäten der Energieniveaux sind entsprechend dem Schalenmodell nach GOEPPERT MAYER[6]) angenommen worden.

2. β-Spektrum und γ-Linien des Mo^{99}.

Zur Untersuchung des β-Spektrums des Mo^{99} und der Konversionslinien des Tc^{99*} im Gleichgewicht wurde MoO_3-Pulver durch ein feinmaschiges Sieb auf eine Zaponfolie gestäubt und die Schicht mit einer zweiten Folie bedeckt. Das Gewicht der Quelle betrug 2 mg/cm² für die Messungen über 1500 Gauss·cm. Aus Intensitätsgründen wurde für den energiearmen Teil des Spektrums eine Quelle von 5 mg/cm² verwendet. Die Messung wurde im Linsenspektrometer mit einem Auflösungsvermögen von 2,8% durchgeführt. Fig. 2 gibt das β-Kontinuum und die Konversionslinie wieder. Die Maximalenergie des β-Spektrums beträgt 1,225 $\pm$ 0,015 MeV. Nach dem Termschema muss sich die Abweichung von der Geraden im F-K-Diagramm (Fig. 3) im Energiebereich unter 500 keV zeigen. Die registrierte Abweichung erklärt sich allerdings auch teilweise aus der Verlangsamung und Rückstreuung der Elektronen in diesem relativ dicken Präparat. Das Intensitätsverhältnis der Spektren von 1,2 MeV und 0,5 MeV Maximalenergie kommt mit 85:15 im wesentlichen richtig heraus, wenn die Impulsverteilung des zweiten Partialspektrums mittels der Fermi-Geraden extrapoliert wird.

Dem β-Spektrum sind mehrere Konversionslinien überlagert, vor allem die zum magnetischen Dipol-Übergang von 141 keV Energie gehörenden. Der Messung lässt sich das ungefähre Verhältnis der Zahl der Konversionselektronen dieses Übergangs zur Anzahl der β-Übergänge entnehmen, und daraus kann mittels des

Zerfallsschemas der Konversionskoeffizient N-Elektronen: N-Quanten des 141 keV-Überganges berechnet werden. Er beträgt $0{,}10 \pm 0{,}03$.

Ausserdem sind auch Konversionslinien eines (182 ± 3) keV-Überganges von bedeutend geringerer Intensität feststellbar. Cork, Keller und Stoddard[7]), die das Konversionslinienspektrum des Mo^{99} ebenfalls untersucht haben, geben als Übergangs-

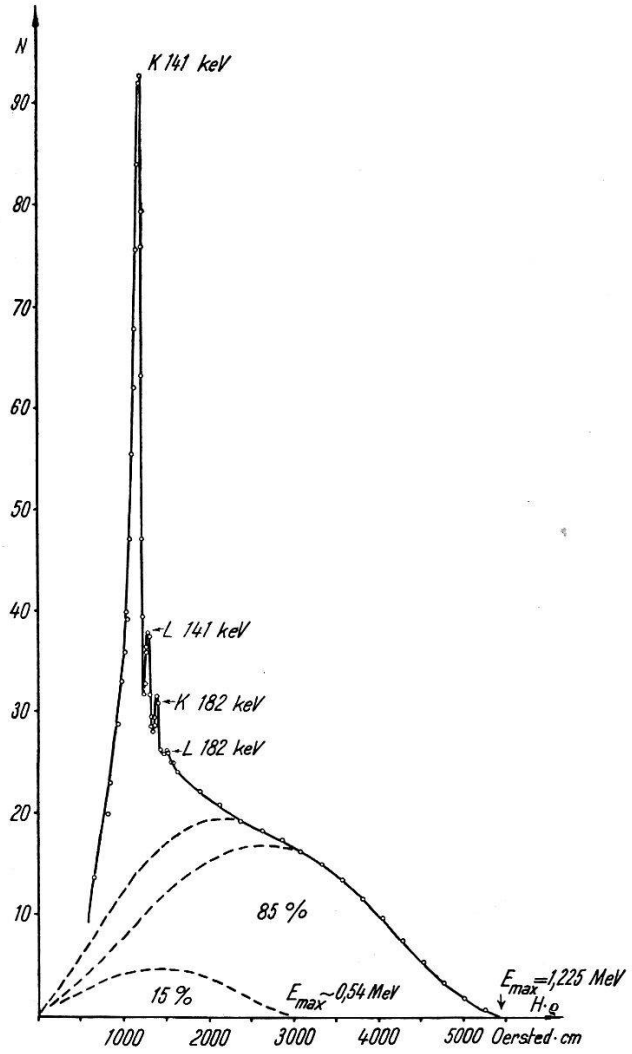

Fig. 2.
Elektronenspektrum des Mo^{99}.

energien 139,6 keV und 179,3 keV an. Sie registrierten zudem eine Linie von 167,6 keV, von der wir in unseren allerdings dickeren Präparaten keine Andeutung fanden.

Zur Untersuchung der unkonvertierten γ-Strahlung wurde MoO_3-Pulver in eine 0,5 mm dicke Messinghülse eingebracht, die ihrerseits in einer 0,5 mm dicken, mit 17 μ-Bleifolie bedeckten Aluminiumhülse steckte. Damit wurde im Linsenspektrometer das

Photo- und Comptonelektronenspektrum ausgemessen (Fig. 4). Über Energie und Interpretation der aufgefundenen Linien gibt Tabelle 1 Auskunft.

Tabelle 1.

Energien der γ-Strahlung aus der Ausmessung des Photoelektronenspektrums.

Energie der Elektronen keV	Elektronenschale	Energie der γ-Strahlung keV
52	K	140
94	K	182
125	L	141
137	M	141
166	L	182
271	K	359
345	L	361
640	K	728

Ausser den Untersuchungen im Spektrometer wurden auch Absorptionsmessungen mit geeichten Zählern vorgenommen. Eine Absorptionskurve der γ-Strahlung des Mo und des mit ihm im Gleichgewicht stehenden Tc ist in Fig. 5, links, reproduziert. Die

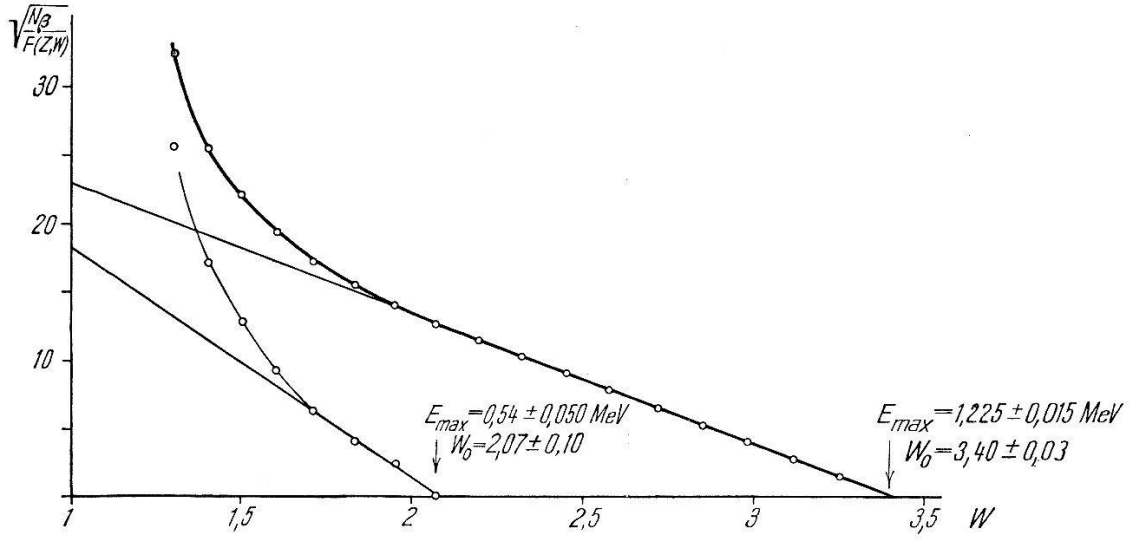

Fig. 3.

F-K-Diagramm des Mo^{99}.

Messung wurde mit einem Aluminiumzählrohr von 0,2 mm Wandstärke durchgeführt, dessen Innenwand mit einer 40 μ dicken Goldschicht ausgekleidet war. Durch Kohleabsorber wurde die harte β-Strahlung vom Zählrohr ferngehalten. Aus der bekannten Sensibilität kann die Intensität der beiden stärksten Komponenten

ermittelt werden. Es ergibt sich daraus, dass die 141 keV-Quanten 9mal häufiger sind als die (728 ± 8) keV-Quanten. Aus der Höhe der Photoelektronenlinien im Linsenspektrometer lässt sich die

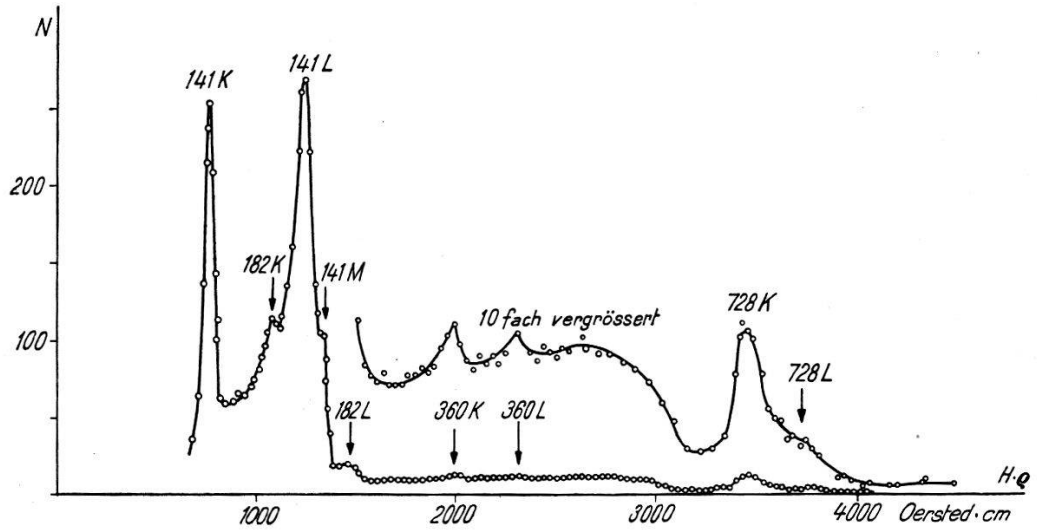

Fig. 4.
Photo- und Comptonelektronenspektrum des Mo^{99}.

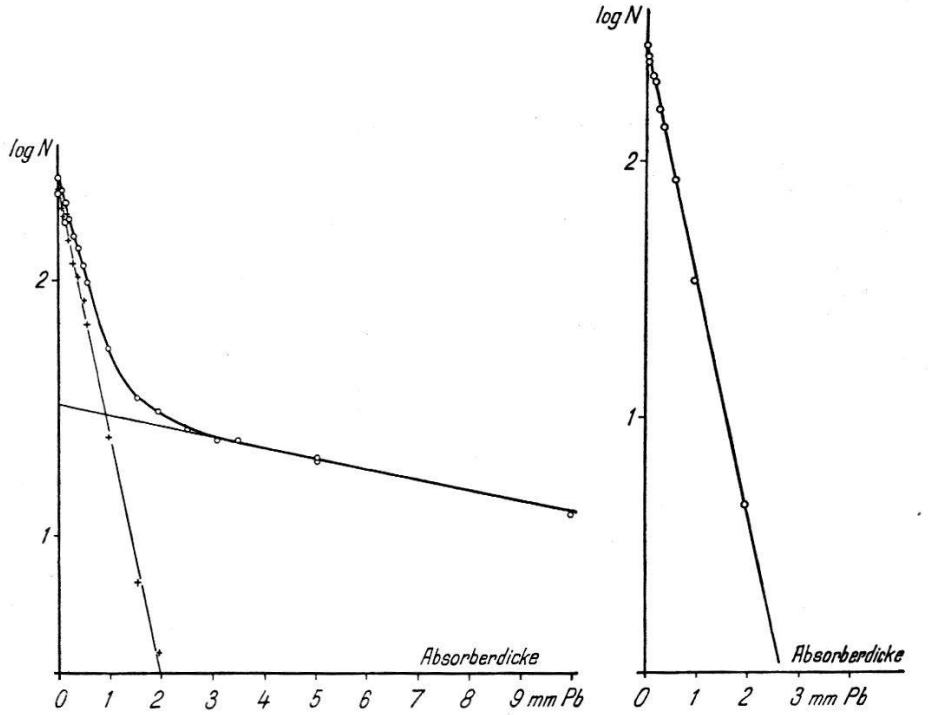

Fig. 5.
Absorption der γ-Strahlung in Blei des Mo^{99} im Gleichgewicht mit Tc^{99*} (links) und des abgetrennten Tc^{99*}.

Intensität der dazwischen liegenden γ-Linien von 182 ± 3 keV und 360 ± 6 keV zu (4 ± 1,5) %, bzw. (1,5 ± 0,5) % derjenigen von 141 keV abschätzen.

Im weiteren interessiert noch das experimentelle Verhältnis der Zahl der γ-Übergänge zur Zahl der β-Zerfälle. Mit geeichten Anordnungen wurden mit β- und γ-Zählrohren Absorptionskurven aufgenommen und diese zerlegt. Es ergibt sich daraus, dass das Verhältnis der β-Zerfälle zu den Übergängen von 141 keV Energie $0{,}92 \pm 0{,}15$ beträgt. Die Unsicherheit rührt hauptsächlich von der Extrapolation der Stosszahl im β-Zählrohr auf Absorber- und Wanddicke Null her.

Die von Schwarz und Pool[8]) an einem deutonenbestrahlten Molybdänpräparat im Spektrographen beobachteten γ-Linien von 0,770, 0,815 und 0,840 MeV, die dem Mo^{99} oder seinem Folgeprodukt Tc^{99*} zugeschrieben wurden, gehören in Wirklichkeit dem Tc^{95} mit 20 Stunden und dem Tc^{96} mit 104 Stunden Halbwertszeit an[13]). Miller und Curtiss[2]) geben auf Grund von Messungen von Photoelektronen eine γ-Linie des Mo^{99} von 0,24 MeV Energie an. Eine solche Linie konnten wir nicht auffinden. Es mag sein, dass die beiden Forscher die L-Photoelektronenlinie der 0,18 MeV-Strahlung als K-Linie interpretieren, da ihnen die tatsächliche K-Linie infolge der Nachbarschaft der viel intensiveren 141 keV-L-Photoelektronenlinie leicht entgangen sein konnte.

3. Koinzidenzmessungen am Mo^{99}.

Die nach dem Termschema zu erwartenden Koinzidenzen zwischen dem energieärmeren β-Teilspektrum und der γ-Strahlung wurden von Mandeville und Scherb[3]) festgestellt. Aus ihren Messungen schlossen diese Forscher auf eine Maximalenergie des koinzidenzfähigen Teilspektrums von 0,24 MeV. Wir wiederholten ihre Messungen, erhielten aber als Reichweite 0,6 mm in Aluminium, was einer Maximalenergie der β-Strahlung von rund 0,5 MeV entspricht (Fig. 6). Wird jedoch, anstatt die β-Strahlung zu absorbieren, die γ-Strahlung mit Bleiabsorbern geschwächt, so erkennt man aus dem komplexen Verlauf der Absorptionskurve der Koinzidenzen, dass γ-Quanten verschiedener Energie mit der β-Strahlung koinzidieren (Fig. 7). Die eine Komponente wird von den 728 keV-Quanten gebildet, die andere von den 141 keV-Quanten. Wegen der schlechten Geometrie verlaufen die Absorptionskurven beider Komponenten zu flach. Unter Berücksichtigung der Sensibilitäten für die beiden γ-Energien und einer Konversion der weicheren Strahlung von 10% ergibt sich, dass die β-Strahlung mit beiden Quanten, wie vom Termschema gefordert, gleich häufig koinzidiert. Eine Bestätigung für die im Termschema angegebene

γ-γ-Kaskade ergab sich aus γ-γ-Koinzidenzmessungen, deren Rate, bezogen auf die Zahl der 728 keV-Quanten, der berechneten entspricht. Dass der zweite Kaskadenpartner wirklich die 141 keV Strahlung ist und nicht etwa die schwache 182 keV-Linie, konnte ausser an dem Verlauf der Absorptionskurve der Koinzidenzen aus β-γ-Koinzidenzmessungen im Linsenspektrometer ersehen werden. Als Detektor der γ-Strahlung diente ein Anthrazen-Szintillationszähler, der gegen die β-Strahlung durch Absorber niedrigen Atomgewichtes geschützt war. Aus diesen Messungen (Fig. 8), die aus

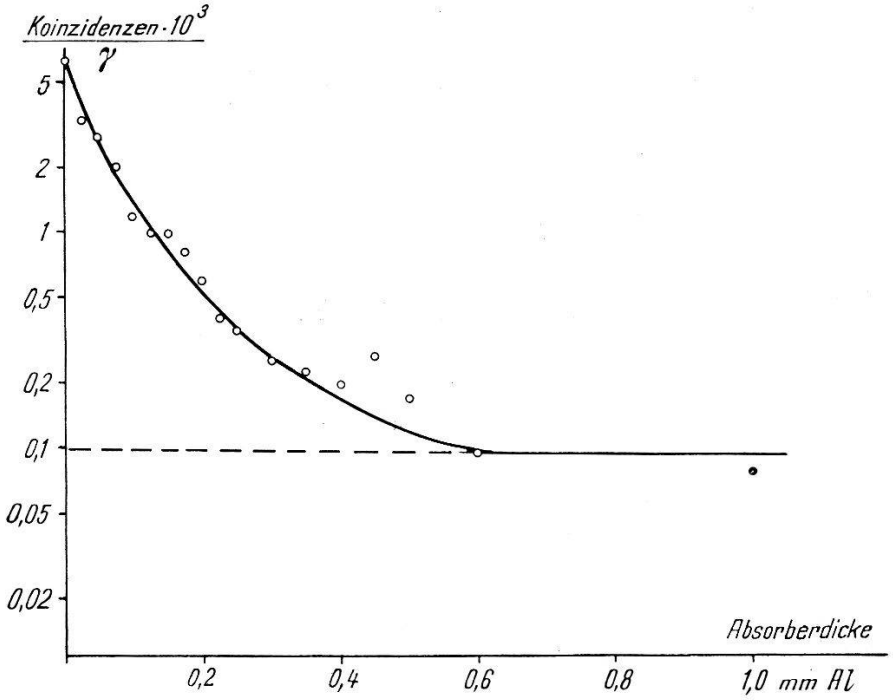

Fig. 6.
β-γ-Koinzidenzen. Al-Absorber vor β-Zählrohr.

Intensitätsgründen mit einem 10 mg/cm² wiegenden Präparat durchgeführt werden mussten, zeigt sich deutlich — neben der Tatsache, dass lediglich das energiearme Teilspektrum mit γ-Strahlung koinzidiert —, dass Konversionselektronen des 141 keV-Überganges gleichzeitig mit γ-Strahlung ausgesandt werden. Die als Folge der Emission eines Hüllenelektrons ausgestrahlten Röntgenquanten kommen als Kaskadenpartner nicht in Betracht, da der Szintillationszähler in der verwendeten Anordnung nicht auf solch weiche Strahlung ansprach. Anderseits zeigt sich an der Stelle der Konversionslinien der 182 keV-Strahlung keine ausgeprägte Spitze.

Da die Partner der β—γ-Koinzidenzen feststehen, kann aus der Koinzidenzrate der Bruchteil der β-Übergänge mit kleiner Energie berechnet werden. Durch Eichmessungen mit einem Präparat von

Au^{198}, von welchem bekannt ist, dass praktisch alle β-Übergänge mit γ-Strahlung verbunden sind, konnten die Unsicherheiten bezüglich des Raumwinkels und des Ansprechvermögens des Koinzidenzverstärkers eliminiert werden. Bei den β-γ-Koinzidenzen im

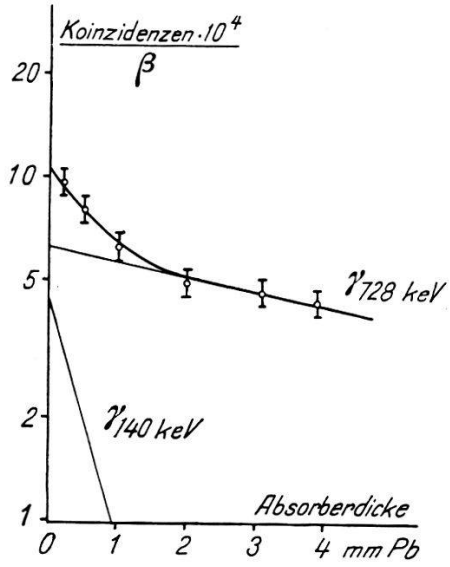

Fig. 7.
β-γ-Koinzidenzen. Pb-Absorber vor γ-Zählrohr.

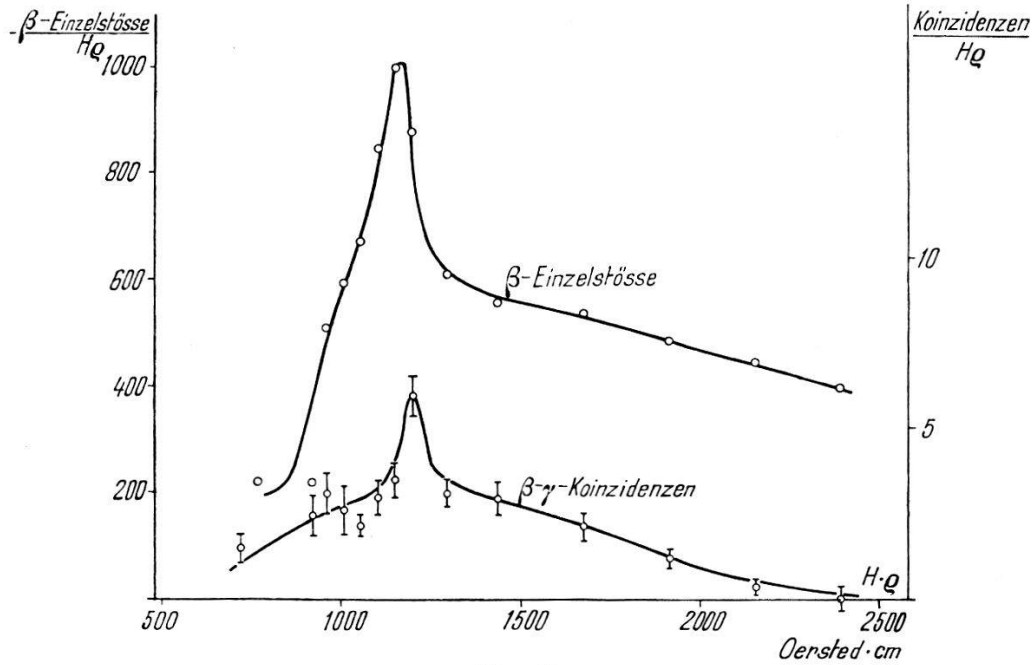

Fig. 8.
β-γ-Koinzidenzen im Linsenspektrometer.

Mo^{99} ist zu berücksichtigen, dass ein Teil durch die Konversionselektronen des 141 keV-Überganges und die harte γ-Strahlung zustande kommt. Die Berechnung ergibt, dass $(15 \pm 3)\%$ der β-Übergänge mit der γ-Strahlung von 728 keV Energie und

$(16 \pm 3)\%$ mit den 141 keV-Übergängen (Quanten plus Elektronen) koinzidieren. Dies stimmt überdies mit dem, was sich aus der Analyse des F-K-Diagramms ergibt, überein.

In β-β-Koinzidenzmessungen konnte weiter die Koinzidenzfähigkeit zwischen dem energiearmen Partialspektrum und den Konversionselektronen des 141 keV-Überganges festgestellt werden.

Dass das β-Spektrum von 1,2 MeV Maximalenergie nicht mit der 141 keV-γ-Strahlung koinzidiert, bedeutet, dass keine β-Zerfälle direkt auf dieses Niveau führen, folglich der Grad der Verbotenheit eines solchen Überganges ein höherer sein muss. Nach unserm Termschema wäre dieser unter Zugrundelegung der Auswahlregeln von Gamow-Teller zweifach verboten, im Unterschied zu den beiden beobachteten einfach verbotenen, deren $f \cdot t$-Werte $6{,}9 \cdot 10^6$ — für 1,2 MeV Maximalenergie — und $2{,}6 \cdot 10^6$ — für 0,5 MeV — betragen.

4. Über die γ-Linien von 182 und 360 keV Energie.

Im Zerfall des Mo^{99} ist die Einordnung der intensitätsschwachen Übergänge von 182 und 360 keV nicht völlig geklärt. Eine Möglichkeit bestände zunächst darin, noch ein drittes Partialspektrum anzunehmen, dessen Übergänge auf ein Niveau führen, das 182 keV über dem höchsten im Termschema eingezeichneten Niveau des Tc liegt. Dies würde bedeuten, dass nicht alles, was bisher als Rückstreuung im β-Spektrum interpretiert war, tatsächlich Rückstreuung ist. Allerdings müssten dann die γ-γ-Koinzidenzen wegen des Auftretens von Dreifachkoinzidenzen häufiger sein als sie tatsächlich sind, bzw. die Sensibilität unserer Zählrohre für diese Strahlung müsste überschätzt worden sein. Auch die β-γ-Koinzidenzmessungen (Fig. 6 und 7) bieten keinen Hinweis dafür, dass dieses dritte Partialspektrum existiert. Derselbe Schluss kann aus den Koinzidenzmessungen im β-Spektrometer gezogen werden. Die 360 keV-Strahlung, die gleich wie die vorher erwähnte nicht im abgetrennten Technetium nachgewiesen werden konnte, ist so schwach, dass sie an mehreren Stellen des Termschemas widerspruchsfrei eingeordnet werden könnte. Es wäre hier denkbar, dass ein so schwaches β-Spektrum mit einer Maximalenergie von 1215 —360 keV vorhanden ist, das sich im F-K-Diagramm kaum bemerkbar macht. Von der Einzeichnung dieser Linien ins Termschema wurde darum abgesehen.

Im Hinblick auf diese Linien sei noch darauf hingewiesen, dass ihre Energien sowie diejenigen der harten γ-Linie sich recht genau wie 1:2:4 verhalten.

5. Genetische Zusammenhänge.

Die Tochtersubstanz Tc^{99*} mit 6,0 Stunden Halbwertszeit lässt sich vom Mo abtrennen durch Fällung des letzteren mit Oxychinolin. Das in Lösung zurückbleibende Tc kann nach Zufügen von Salzsäure als Sulfid gefällt werden.

Die γ-Strahlung von 141 keV wird sowohl bei den Zerfällen emittiert, die über den isomeren Zustand verlaufen, als auch bei denjenigen, die über das angeregte Niveau sogleich zum Grundzustand führen. Befreit man eine Molybdänprobe vom Technetium, so werden daher zunächst nur diejenigen γ-Quanten von 141 keV feststellbar sein, die beim direkten Übergang emittiert werden. Wenn man den Anstieg der weichen γ-Strahlung vom Zeitpunkt der Trennung an verfolgt, so liefert die auf diese Zeit extrapolierte Intensität verglichen mit derjenigen im Gleichgewichts-

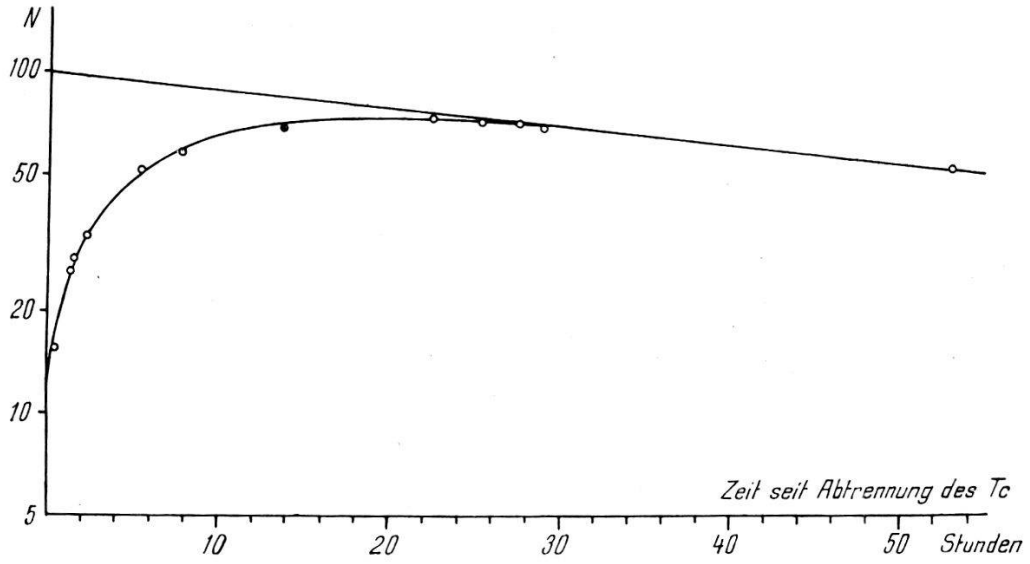

Fig. 9.
Zeitlicher Verlauf der Intensität der 141 keV-γ-Strahlung nach Abtrennung des Tc-Isomers.

zustand direkt das Verzweigungsverhältnis der beiden Zerfallsmöglichkeiten.

Die Genauigkeit dieser Messung hängt davon ab, wieviel vom Technetium am Oxychinolin-Niederschlag, der die Molybdänaktivität enthält, adsorbiert wird. Durch vergleichende Versuche mit Molybdän, das im Zyklotron mit Protonen von 7 MeV Energie bestrahlt wurde, konnte mittels der Aktivität des Tc^{96} als Indikator festgestellt werden, dass bei Verwendung von viel Lösungsmittel weniger als 2% des Tc adsorbiert werden. Aus den Messungen des Anstiegs der 141 keV-Aktivität (Fig. 9) ergibt sich, dass $(88 \pm 2)\%$

aller Zerfälle über das 6-Stunden-Isomer führen. Dieser Wert ist etwas grösser als der aus den Koinzidenzmessungen erhaltene. Wie zu erwarten, macht die γ-Strahlung von 728 keV diesen Aktivitätsanstieg nicht mit.

6. Das Elektronenspektrum des abgetrennten Tc^{99*}.

Nach dem von JACOBI[9]) beschriebenen Verfahren ist es möglich, das Tc in dünnster Schicht auf Kupferfolien elektrolytisch aufzubringen.

Die Untersuchung des Elektronenspektrums wurde sowohl im Linsenspektrometer (Fig. 10) als auch in einem Halbkreisspektro-

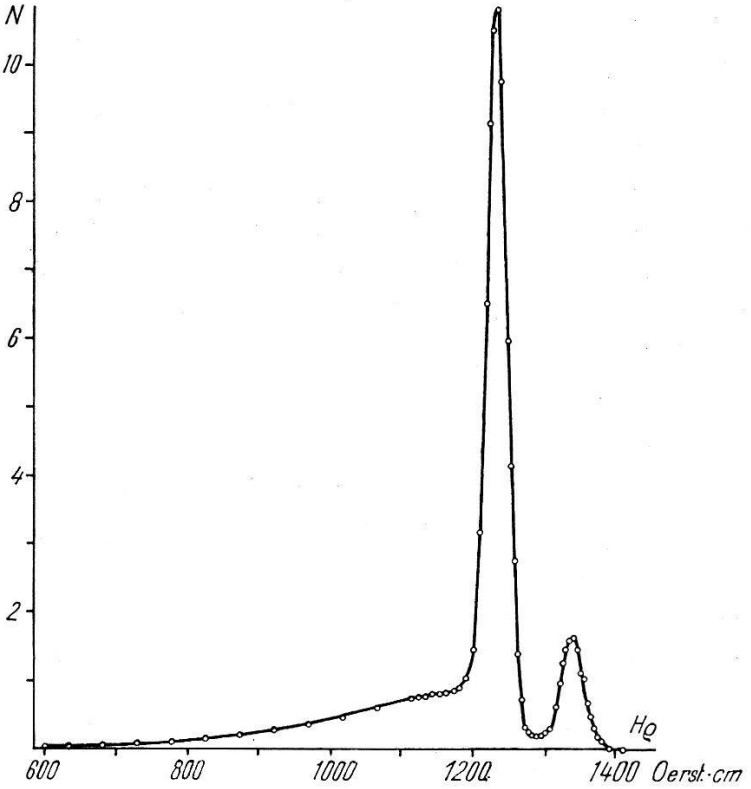

Fig. 10.

Konversionslinien des 141,2-keV-Überganges (abgetrenntes Tc^{99})
Messung im Linsenspektrometer, Stosszahl nicht durch $H\varrho$ dividiert.

meter mit 0,8% Auflösungsvermögen vorgenommen. Das Zählrohrfenster des letzteren liess Elektronen bis hinunter zu einer Energie von 8 keV durch. Abgesehen von Augerelektronenlinien im energiearmen Bereich fanden wir nur die schon von SEABORG und SEGRÈ aufgefundenen, zur bekannten γ-Linie gehörigen Konversionselektronen. Aus der Energie der K-, L-, M- und N-Linien bestimmten wir die Energie dieser Strahlung zu $141{,}2 \pm 0{,}5$ keV.

Das $K:L:(M+N)$-Konversionsverhältnis beläuft sich nach unseren Messungen auf $(7{,}9 \pm 0{,}5):1:(0{,}30 \pm 0{,}03)$. Der von FEENBERG und HAMMACK[14]) angenommene direkte β-Übergang vom isomeren Zustand des Tc in den Grundzustand des Rutheniums, der in mindestens 2/1000 der Zerfälle auftreten sollte, konnte nicht aufgefunden werden. Unsere Messungen schliessen ein Verzweigungsverhältnis von mehr als $3 \cdot 10^{-4}$ aus.

Das Spektrum der Photoelektronenlinien, ausgelöst aus Blei und aus Gold, zeigt nur die γ-Strahlung von 141 keV an. Insbesondere die schwache γ-Linie von 182 keV Energie ist nicht mehr nachzuweisen.

Zur Bestimmung des Konversionskoeffizienten der 141 keV-Linie wurde mit geeichten Zählern unter bekanntem Raumwinkel eine Absorptionskurve der β- und der γ-Strahlung (Fig. 5, rechts) aufgenommen.

Aus den Stosszahlen in beiden Zählrohren ermittelte sich der totale Konversionskoeffizient zu $9{,}5 \pm 2\%$. Dies ergibt für den K-Konversionskoeffizienten ca. 8%. In Tabelle 2 sind die nach HEBB und NELSON[10]) berechneten $K:L$-Verhältnisse sowie die nach ROSE et al.[11]) unter Benutzung dieser $K:L$-Verhältnisse berechneten totalen Konversionskoeffizienten für die in Frage kommenden Multipolstrahlungen aufgeführt.

Tabelle 2.

Theoretische Konversionsverhältnisse für $Z = 43$ und $E_\gamma = 141$ keV.

Strahlungscharakter	$\alpha_K : \alpha_L$	α_K	α_{total}
Elektrische Dipolstrahlung	8,0	0,045	0,057
Elektrische Quadrupolstrahlung . .	5,6	0,30	0,36
Magnetische Dipolstrahlung	7,0	0,098	0,114
Elektrische Oktopolstrahlung	2,9	1,65	2,24
Magnetische Quadrupolstrahlung . .	6,4	0,70	0,82

Die experimentellen Daten sprechen für die Annahme magnetischer, allenfalls elektrischer Dipolstrahlung (vgl. Abschnitt 8). Es kann deshalb mit Sicherheit angenommen werden, dass dieser Übergang wegen seines Dipolcharakters nicht derjenige ist, dem die Isomerie zuzuschreiben ist. Die Absorptionskurven der Elektronen und der γ-Strahlung zeigen jedoch deutlich, dass keine merkliche Elektronen- und γ-Strahlung über 50 keV (abgesehen vom 141-keV-Übergang) vorhanden sein kann. Der isomere Übergang muss demnach eine Energie unter 8 keV besitzen.

7. Koinzidenzmessungen am Tc^{99*}.

Dem 141 keV-Übergang hat der eigentliche isomere Übergang voranzugehen. Es muss daher möglich sein, Koinzidenzen zwischen diesen beiden festzustellen. Ein elektrolytisch hergestelltes Präparat wurde hierzu auf die Innenwand eines Zählrohres gebracht und neben dieses β-Zählrohr ein auf die 141 keV-γ-Strahlung ansprechendes γ-Zählrohr mit Goldkathode gelegt. Die Konversionselektronen wurden in den Wänden total absorbiert und konnten darum das γ-Zählrohr nicht zum Ansprechen bringen. Die Einzelstosszahl im β-Zählrohr war von der Grössenordnung 500/sec. Da jedem Quant, das im γ-Zählrohr registriert wird, ein isomerer Übergang mit Aussendung eines Elektrons (evtl. auch eines weichen Quants) vorausgeht und die Emission beim isomeren Übergang mit gleicher Wahrscheinlichkeit ins Zählvolumen oder in die Wand erfolgt, muss die Zahl der Koinzidenzen rund die Hälfte (evtl. mehr) der Einzelstösse im γ-Zählrohr betragen. Tatsächlich entfielen auf eine Koinzidenz (nach Abzug der zufälligen und der durch die kosmische Strahlung verursachten) $1{,}9 \pm 0{,}3$ Einzelstösse im γ-Zählrohr und 920 im β-Zählrohr. Unter Berücksichtigung der entsprechenden Raumwinkel und Sensibilitäten der Zählrohre kommt man so auf ein Verhältnis der emittierten Elektronen zu den γ-Quanten von $1{,}1 \pm 0{,}4$. Man könnte versucht sein anzunehmen, dass das γ-Quant, das im γ-Zählrohr gezählt wird, schon das β-Zählrohr zum Ansprechen gebracht habe, und dass gar keine Kaskade vorliege. Compton- und Photoeffekt kommen aber zur Erklärung einer solch hohen Einzelstosszahl nicht in Frage, da die Grössenordnung der Ansprechwahrscheinlichkeit auf γ-Strahlung dieselbe sein müsste wie bei einem normalen Zählrohr. Der Rückstoss der Kerne bei der Emission eines γ-Quants ist aber zu klein, um das Zählrohr mit so hoher Wahrscheinlichkeit zum Ansprechen zu bringen.

Für eine erste Orientierung über die Art der weichen Strahlung wurde das Präparat durch dünne Nylonfolien abgedeckt. Aus der starken Absorption ergab sich, dass die koinzidenzfähige Strahlung extrem weich war.

8. Untersuchungen im Proportionalzählrohr.

Zur Messung sehr kleiner Energien ist heute der Proportionalzähler eines der geeignetsten Mittel. Seine Anwendung beschränkte sich bisher auf die Untersuchung gasförmiger radioaktiver Substanzen, die dem Füllgas beigegeben wurden oder von elektromagnetischer Strahlung, die man durch ein Fenster ins Zählrohr

eintreten liess. Auch im Falle des Technetiums wäre es wohl möglich gewesen, das sehr leicht flüchtige Tc_2O_7 in einem auf ca. 150° C geheizten Zählrohr zum Verdampfen zu bringen. Wir zogen es jedoch vor, auf Kupferfolien elektrolysierte Präparate zu verwenden, die an der Zählrohrwand befestigt wurden.

Die Registrierung der Impulse nahmen wir mit einem einfachen Impulsspektrographen[12]) vor. Fig. 11 zeigt eine Aufnahme, für die das Zählrohr (Durchmesser 2,2 cm, Länge 5,5 cm) mit 85 mm Argon und 15 mm Äthylalkohol gefüllt war. Mit der *K*-Strahlung des *Mn*, die von einem Fe^{55}-Präparat emittiert wird und durch ein

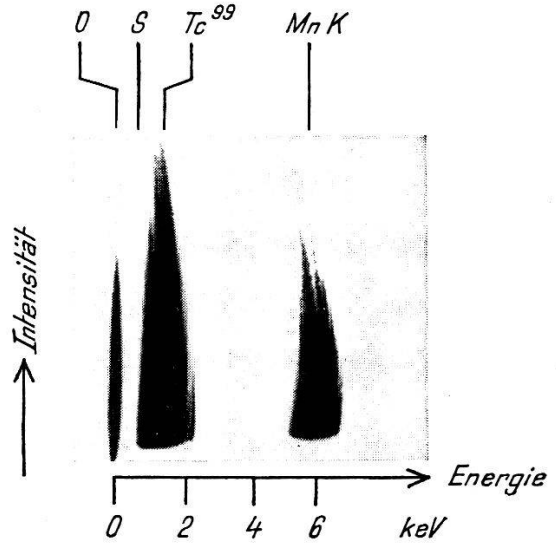

Fig. 11.
Impulsspektrogramm der Tc^{99*}-Strahlung.
O = Null-Linie, erzeugt durch künstliche Impulse
S = Ansprechschwelle des Impulsspektrographen
MnK = Eichlinie (Fe^{55}-Präparat, ausserhalb des Zählrohrs)

Fenster ins Zählrohrinnere eintritt, wurde die Energieeichung vorgenommen. Da Konversionselektronen und nachfolgende Röntgenquanten teilweise zusammen im Gas absorbiert werden, stellt die obere Grenze der registrierten Verteilung die Totalenergie des Überganges dar. Eine Diskussion der Wandeffekte, die gewisse Aufschlüsse über die Konversionsverhältnisse liefern können, findet sich in der zitierten Arbeit[12]).

Bringt man das Präparat nicht an der Zählrohrwand, sondern auf einer vom eigentlichen Zählvolumen durch ein Gitter abgeschirmten Hilfselektrode an, dann ergeben sich neue Möglichkeiten für die Unterscheidung zwischen Elektronen und Quantenstrahlung. Bei genügend hohem Gasdruck werden die emittierten Elektronen völlig im Vorraum zwischen Präparat und Gitter absorbiert. Die von ihnen im Gas freigemachten Sekundärelektronen können

durch Anlegen einer positiven Spannung der Grössenordnung 10.... 100 V an das Präparat auf dem letzteren gesammelt und daher vom Zählvolumen abgehalten werden. Gleichzeitig kann man durch passende Wahl des Füllgases dafür sorgen, dass der Grossteil der vom Präparat emittierten Quantenstrahlung im Zählvolumen absorbiert wird. Damit kann auf eine sehr wirksame Weise eine schwache Quantenstrahlung hervorgehoben werden, die sonst im Elektronenuntergrund untergehen würde. Beim Anlegen einer negativen Spannung an das Präparat wird hingegen erreicht, dass die im Vorraum freigemachten Elektronen in den Zählrohrraum hineingezogen werden. Über dieses Verfahren soll in einem späteren Artikel eingehender berichtet werden.

Die Messungen im Proportionalzähler ergeben für die Gesamtenergie des Überganges $1{,}8 \pm 0{,}3$ keV. Ein unkonvertierter Anteil konnte nicht beobachtet werden, hingegen treten M-Röntgenquanten auf, womit bewiesen ist, dass Konversion der Strahlung in der M-Schale stattfindet. Von N-Röntgenquanten, deren Energie nur ungefähr 60 eV beträgt, was durchschnittlich 2 in Freiheit gesetzten Elektronen entspricht, konnten nur unsichere Andeutungen erhalten werden. Dazu ist allerdings zu bemerken, dass ein grosser Teil der Übergänge wohl strahlungslos durch Augerprozesse verläuft. In der Tat wurde in der Elektronenstrahlung eine merkliche Anzahl Elektronen extrem niedriger Energie gefunden, so dass die N-Konversion vergleichbar mit der M-Konversion zu sein scheint.

Es ist anzunehmen, dass dieser Übergang die Lebensdauer des isomeren Tc^{99} bestimmt, und dass ein direkter Übergang in den Grundzustand trotz viel höherer Energie ($141{,}2 + 1{,}8 = 143$ keV) wesentlich unwahrscheinlicher ist*). Die Übergangsordnung Λ des letzteren muss daher — da $\Lambda = 4$ nach Axel und Dancoff eine Lebensdauer von wenigen Minuten ergäbe — mindestens $\Lambda = 5$ betragen, während für den isomeren Übergang von 1,8 keV Energie mit 6 Stunden Halbwertszeit die Extrapolation der in diesem Bereich sehr unsicheren Energie-Lebensdauerbeziehung etwa auf $\Lambda = 3$ führen würde.

Bei einem Spin des Grundzustandes von 9/2, wie er sich aus dem Schalenmodell[6]) ergibt, kann die Drehimpulsdifferenz bis zum isomeren Zustand höchstens 4 Einheiten erreichen, wobei man für den letzteren den Spin 1/2 annehmen muss. Um nun einen direkten

*) Entsprechende Konversionselektronen waren nicht beobachtbar. Allerdings ist zu beachten, daß die Nachbarschaft der viel intensiveren Konversionslinie des 141 keV-Überganges einen solchen Nachweis schwierig macht, indem sich die $H\varrho$-Werte nur um 0,8% voneinander unterscheiden.

Übergang in den Grundzustand mit $\Delta = 4$ auszuschliessen, müssen wir dem isomeren Niveau die entgegengesetzte Parität zuordnen, so dass die Strahlung niedrigster Ordnung beim direkten Übergang diejenige eines magnetischen 2^4-Poles ist.

Der 141 keV-Übergang ist nach Abschnitt 6 mit einer Drehimpulsänderung um eine Einheit verbunden und muss sich mit dem vorangehenden isomeren Übergang zu der Gesamtdifferenz von 4 Einheiten zwischen isomerem und Grundzustand kombinieren. Eine Spinänderung um 3 Einheiten beim isomeren Übergang ist nun mit der Lebensdauer sowohl bei elektrischer als auch magnetischer Oktopolstrahlung verträglich, wenn man bedenkt, dass bei so niedriger Energie die Übergangswahrscheinlichkeit für magnetische Strahlung dieselbe Grössenordnung erreicht wie für elektrische Strahlung gleicher Multipolordnung. Auch die Konversionsverhältnisse des nachfolgenden Dipolüberganges liefern keine klare experimentelle Entscheidung zwischen elektrischer und magnetischer Strahlung. Wir haben deshalb in Figur 1 die Frage nach der Parität des 141 keV-Zustandes offen gelassen. Das Schalenmodell spricht allerdings zugunsten einer ungeraden Parität dieses Zustandes, womit denn der isomere Übergang von 1,8 keV Energie als magnetische Oktopolstrahlung, der nachfolgende von 141 keV als elektrische Dipolstrahlung festgelegt wäre.

Herrn Dr. Seligman, Harwell, möchten wir für die Bestrahlung in der Pile und die treffliche Organisation des Transportes nach Zürich unseren Dank aussprechen. Unser Dank gilt vor allem auch Herrn Dr. E. Jacobi, der die chemischen Trennungen durchführte, sowie Herrn Prof. Dr. P. Scherrer für das anspornende Interesse, das er dieser Arbeit widmete.

Literaturverzeichnis.

[1]) G. T. Seaborg und E. Segrè, Phys. Rev. **55**, 808 (1939).
[2]) L. C. Miller und L. F. Curtiss, Phys. Rev. **70**, 983 (1946).
[3]) C. E. Mandeville und M. V. Scherb, Phys. Rev. **73**, 848 (1948).
[4]) M. L. Wiedenbeck, Phys. Rev. **69**, 567 (1946).
[5]) P. Axel und S. M. Dancoff, Phys. Rev. **76**, 892 (1949).
[6]) Maria Goeppert Mayer, Phys. Rev. **78**, 16 (1950).
[7]) J. M. Cork, H. B. Keller und A. E. Stoddard, Phys. Rev. **76**, 575 (1949).
[8]) W. M. Schwarz und M. L. Pool, Phys. Rev. **71**, 122 (1947).
[9]) E. Jacobi, Helv. Chim. Acta **31**, 2118 (1948).
[10]) M. H. Hebb und E. Nelson, Phys. Rev. **58**, 486 (1940).
[11]) M. E. Rose, G. Goertzel, B. Spinrad, J. Harr und P. Strong, privat verteilt.
[12]) D. Maeder und H. Medicus, Helv. Phys. Acta **23**, Suppl. III, 175 (1950).
[13]) H. Medicus, P. Preiswerk und P. Scherrer, Helv. Phys. Acta **23**, 299 (1950).
[14]) E. Feenberg und K. C. Hammack, Phys. Rev. **75**, 1877 (1949).