Zeitschrift:	Helvetica Physica Acta
Band:	23 (1950)
Heft:	III
Artikel:	Untersuchungen über den radioaktiven Zerfall bei Isotopen des Technetiums
Autor:	Medicus, Heinrich / Preiswerk, Peter / Scherrer, Paul
DOI:	https://doi.org/10.5169/seals-112112

#### Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. 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. <u>Siehe Rechtliche Hinweise.</u>

#### **Conditions d'utilisation**

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. <u>Voir Informations légales.</u>

#### Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. <u>See Legal notice.</u>

**Download PDF:** 02.04.2025

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

# Untersuchungen über den radioaktiven Zerfall bei Isotopen des Technetiums

von Heinrich Medicus, Peter Preiswerk und Paul Scherrer, ETH. Zürich.

(31. I. 1950.)

Zusammenfassung. Die radioaktiven Umwandlungen der Tc-Isotope der Massenzahlen 92, 94, 95 und 96 wurden mittels Spektrometer-, Koinzidenz- und Absorptionsmessungen, teilweise auch mit Wilsonkammeraufnahmen, aufgeklärt. Von diesen Isotopen werden, mit Ausnahme des ersten, komplette Termschemata gegeben (siehe Zusammenstellung S. 341). Ausserdem werden zwei Isomere des Tc untersucht: das schon lange bekannte des Tc<sup>97</sup> sowie ein neu aufgefundenes unbekannter Massenzahl mit 51,5 Minuten Halbwertszeit und einer Anregungsenergie von 34,4 keV. Am Schlusse der Arbeit werden die Termschemata, unter Heranziehung auch derjenigen des Tc<sup>93</sup>, Mo<sup>99</sup>-Tc<sup>99</sup> und Mo<sup>101</sup>-Tc<sup>101</sup>, miteinander verglichen.

#### I. Einleitung.

Das Element 43 nimmt zusammen mit dem Element 61 im periodischen System insofern eine Sonderstellung ein, als stabile Isotope dieser Elemente in der Natur nicht auftreten. Da nämlich nach der einen MATTAUCH'schen Regel Kerne gerader Massenzahl stets eine gerade Protonen- und Neutronenzahl besitzen, kommt ein Isotop gerader Massenzahl nicht in Betracht. Weiter gibt es nach MATTAUCH keine stabilen Isobarenpaare, deren Ladung sich nur um eine Einheit unterscheidet, abgesehen von den vier bekannten scheinbaren Ausnahmen wie z. B. dem Paar Cd<sup>113</sup>--In<sup>113</sup>. Sämtliche ungeraden Massenzahlen, die für das Element 43 in Frage kommen, sind aber schon von den Nachbarelementen Molvbdän und Ruthenium mit stabilen Kernen besetzt, so dass das Vorkommen eines stabilen Isotops des Elements 43 überhaupt ausgeschlossen werden kann. Wäre nämlich eines dieser Nachbarisobare instabil, so müsste, worauf JENSEN<sup>1</sup>) hingewiesen hat, sich das Element 43 als Begleiter darin finden lassen. Offen bleibt, warum aber alle q-u-Kerne des Mo und des Ru energetisch tiefer liegen als die entsprechenden u-g-Isobaren des Elements 43. Die Existenz eines sehr langlebigen natürlichen radioaktiven Isotops kann aber nicht ausgeschlossen werden, da über die Halbwertszeit des radioaktiven Zerfalls der Isotope 97 und 98 noch nichts bekannt ist, so dass damit zu rechnen sein könnte, dass sie beim einen oder andern noch wesentlich länger ist als diejenige des Isotops 99, die rund 106 Jahre beträgt.

Heinrich Medicus, Peter Preiswerk und Paul Scherrer.

Noddack, Tacke und Berg<sup>2</sup>) hatten 1925 versucht, das Element 43 anzureichern und röntgenspektroskopisch nachzuweisen. Nach ihren Mitteilungen war ihnen auch der Nachweis gelungen, indem sie auf ihren Diagrammen Linien fanden, die sich nur als  $K_{\alpha_1}$ -,  $K_{\alpha_2}$ und  $K_{\beta}$ -Linien des gesuchten Elements interpretieren liessen, dem sie daraufhin den Namen Masurium (Ma) gaben. Da der Beweis für das tatsächliche Vorkommen in der Natur aber doch nicht hinreichend schien, haben PERRIER und SEGRÈ<sup>3</sup>) das Recht der Namengebung für sich beansprucht und den Namen Technetium (Tc) vorgeschlagen. Sie hatten nämlich 1937 als erste durch Bestrahlung von Molybdän mit Deutonen und Neutronen dieses Element hergestellt und seine chemischen Eigenschaften untersucht. Ihrem Vorschlag hat jüngstens die Internationale Union für Chemie entsprochen.

#### II. Die Perioden des Te und ihre Zuordnung zu den Isotopen

Es empfiehlt sich, auf die Zuordnung der einzelnen Aktivitäten zu den verschiedenen Massenzahlen einzugehen. Dieses Problem ist noch nicht völlig gelöst, obwohl in Amerika mit Molybdänproben, in denen bestimmte Isotope angereichert waren, Forschungen in

ZA	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102
₄₁Nb		100	چې	⁺3,7d   <u>I.U</u> 39₫⁺   ß		/	ri de la		%.		
₄₂Mo	15,8	6,7h <u>IU</u> ?	9, 5 T	+15,2 - 15,2 - 15,2	16,5 ₽. <sup>n</sup> d,2n ↑ M	9,5 ° <sup>®</sup> "	23,8 。 <sup>n</sup> *	28d → β ←	9,6 <sup>2</sup> 7, <del>4</del> <sup>2</sup> 7, <del>4</del>	14,6m − ₁ ا	
43 <b>T</b> C	43,5m K	2,7h +K,β 4,5m β⁺	525m 525m	60d Kβ 20b K	4,35d	<b>90<sup>↓</sup>d</b> ↑ <u>I.U.</u> ↑ <u>2</u>	s	6.0h 1.U. 10 <sup>6</sup> a	s	β 14m β	
₄Ru			0'.A.	1622 β⁺,γ	5,7	√2,8d √£,8d	2,2	12,8	12,7	17,0	3,13

#### Tabelle 1.

Erzeugungsarten der Isotope des Technetiums.

<sup>15,8</sup> stabile Isotope und ihre prozentuale Häufigkeit.

M: Erzeugungsreaktion mit angereicherten Isotopen. I. Ü.: Isomerer Übergang. dieser Richtung unternommen worden sind. Der gegenwärtige Stand, wie er sich aus den amerikanischen und unsern eigenen

300

Untersuchungen ergibt, ist in Tabelle 1 zusammengefasst. Darin sind auch die Art der Herstellung der einzelnen Isotope sowie die wichtigsten Daten über deren Zerfall angegeben. Diejenigen Körper, die in der vorliegenden Arbeit untersucht wurden, sind durch Fettdruck hervorgehoben. Die Gründe für die Zuordnung seien hier resumiert.

 $Tc^{92}$  und  $Tc^{93}$ : Durch Bestrahlung von Molybdän mit Protonen erhielten KUNDU und POOL<sup>4</sup>) drei Aktivitäten verschiedener Intensität. Die stärkste mit 47 Minuten Halbwertszeit ordneten sie dem durch eine (p, n)-Reaktion gebildeten  $Tc^{92}$  zu, während die beiden andern Aktivitäten mit Halbwertszeiten von 2,7 Stunden und 4,5 Minuten wegen ihrer geringen Intensität dem  $Tc^{93}$  zugeordnet wurden, das durch den  $(p, \gamma)$ -Prozess entstanden wäre.

Tc<sup>94</sup>: MOTTA und BOYD<sup>5</sup>) bestrahlten eine an Mo<sup>94</sup> angereicherte Target mit Deutonen und erhielten in guter Ausbeute eine 50 + 2 Minuten-Periode, die sie mit unserer<sup>11</sup>) 52,5-Minuten-Periode der Positronen identifizierten, bei der wir früher offen gelassen hatten, ob sie dem Tc<sup>92</sup> oder dem Tc<sup>94</sup> zuzuordnen sei. Bei der Deutonenenergie von 15-20 MeV, mit der MOTTA und BOYD arbeiteten, ist der (d, 2n)-Prozess am wahrscheinlichsten, und so schrieben sie diese Periode dem Tc<sup>94</sup> zu. Dieser Zuordnung scheinen aber die Untersuchungen von KUNDU und POOL zu widersprechen, die ebenfalls angereichertes Mo<sup>94</sup> verwendeten. Sie führten ihre Bestrahlungen mit Protonen von 5 MeV und Deutonen von 10 MeV Energie aus, erhielten jedoch diese Periode nicht. Aus dem später mitgeteilten Zerfallschema der 52,5 Min.-Periode folgt aber, dass mit dieser Protonenenergie der Schwellenwert der (p,n)-Reaktion nicht erreicht wurde; für die (d,2n)-Reaktion liegt er allerdings mit 7,2 MeV unterhalb der angegebenen Deutonenenergie. Falls die Positronenaktivität einem andern Isotop als Tc<sup>92</sup> oder Tc<sup>94</sup> zuzuordnen wäre, müsste sie durch eine (d, n)-Reaktion erzeugt werden können. Die Konzentration auch der übrigen Isotope in den von KUNDU und POOL verwendeten an Mo<sup>94</sup> angereicherten Proben hätte hinreichend sein müssen für die Beobachtung einer durch (d, n)-Reaktion erzeugten Positronenaktivität.

 $Tc^{95}$ :  $Tc^{95}$  mit 20 Stunden Halbwertszeit entsteht nach EGGEN und POOL<sup>6</sup>) aus dem radioaktiven Zerfall des Positronenstrahlers  $Ru^{95}$ . MOTTA und BOYD<sup>7</sup>) erhielten diese Periode auch durch den (d, 2n)-Prozess aus Mo<sup>95</sup>. Beide Forschergruppen schreiben dem  $Tc^{95}$  noch eine zweite Periode von ca. 60 Tagen zu, die durch die Mo<sup>92</sup> ( $\alpha$ , p)-, bzw. Mo<sup>95</sup> (d, 2n)-Reaktion erzeugt wird.

Tc<sup>96</sup>: Die Periode von 104<sup>h</sup> gehört zum Tc<sup>\$6</sup>, da EDWARDS und POOL<sup>8</sup>) es durch einen  $\alpha, n$ -Prozess aus dem Reinelement Nb<sup>93</sup> erzeugen konnten.

Tc<sup>97</sup>: Nach Untersuchungen von SULLIVAN, SLEIGHT und GLADROW<sup>9</sup>) ist das 90<sup>d</sup>-Isomer des Elements 43 das Isotop 97. Es bildet sich nämlich auch bei der Umwandlung des  $2,8^{d}$ -Ru<sup>97</sup> durch K-Einfang. Diese Zuordnung wurde bestätigt durch MOTTA und BOYD<sup>7</sup>). Über den Zerfall des Grundzustandes ist bis jetzt nichts bekannt.

Tc<sup>98</sup>: Für Tc<sup>18</sup> wurde keine gesicherte Halbwertszeit gefunden. MOTTA und BOYD geben zwar eine aus angereichertem Mo<sup>18</sup> durch (d, 2n)-Prozess erzeugte Aktivität von 2,8 Tagen Halbwertszeit an, deren Strahlung aber auffallend mit derjenigen des  $2,8^{d}$  – Mo<sup>99</sup> übereinstimmt. Letzteres kann durch den (d, p)-Prozess ebenfalls aus Mo<sup>18</sup> gebildet werden. Es wäre daher denkbar, dass es sich bei der dem Tc<sup>98</sup> zugeschriebenen Aktivität um Mo<sup>99</sup> handelt, das bei der chemischen Trennung mitgerissen wurde.  $Tc^{99}$ : Das langlebige  $Tc^{99}$  besitzt einen isomeren Zustand mit einer Halbwertszeit von 6 Stunden, der beim  $\beta$ -Zerfall des Mo<sup>99</sup> angeregt wird. Die Zuordnung ist durch (n, 2n)-und  $(n, \gamma)$ -Reaktionen aus Molybdän, sowie durch die  $Zr(\alpha, n)$ -Reaktion gesichert.

 $Tc^{100}$  und  $Tc^{101}$ : Das  $Tc^{101}$  entsteht als Tochterprodukt aus dem Mo<sup>101</sup> und zerfällt mit einer Halbwertszeit von 14,0 Minuten <sup>10</sup>). Bei Bestrahlung von an Mo<sup>100</sup> angereichertem Molybdän mit Deutonen von 15—20 MeV Energie entsteht nach Motta und Boyd eine 80 Sekunden-Periode, für welche sie die Massenzahl 100 oder 101 vorschlagen.

Isotope des Tc mit grösserer Massenzahl als 101 können bei der Bestrahlung von Molybdän mit Protonen nicht auftreten.

Dem Tc-Isotop, das einen isomeren Übergang von 51,5 Minuten Halbwertszeit aufweist<sup>11</sup>), kann bis anhin keine Massenzahl zugeordnet werden. Die ursprüngliche Annahme, dass das Isomer mit den Positronen des 52,5 Min.-Tc<sup>94</sup> genetisch zusammenhänge, hat sich als unwahrscheinlich herausgestellt.

Eine von MOTTA und BOYD<sup>12</sup>) mit 40  $\pm$  5 Minuten gemessene Periode ist wahrscheinlich identisch mit der von KUNDU und POOL mit 47 Minuten und von uns mit 43,5  $\pm$  1,0 Minuten bestimmten Halbwertszeit des Tc<sup>92</sup>. Frühere Zerlegungen<sup>13</sup>) der sehr komplexen Halbwertszeitkurven führten zu weiteren Perioden von 8 und 36 Stunden; später stellte es sich aber heraus, dass nur eine 20-Stunden-Periode vorliegt.

#### III. Herstellung der Präparate.

Für die meisten Versuche wurde Molybdän, dessen Reinheitsgrad nach Angabe des Metallwerks Plansee in Reutte (Tirol) 99,97 bis 99,99% betrug, im Zyklotron mit Protonen von 6,8 MeV Energie bestrahlt. Die Strahlintensität betrug um 100 µAmp. Die chemischen Trennungen sind von E. JACOBI ausgearbeitet und durchgeführt worden, wofür wir ihm unsern besten Dank aussprechen. Das Molybdän wurde dabei als Oxychinolat abgetrennt und das Tc mit Cu als Träger als Sulfid ausgefällt. Je nach den Versuchsbedingungen variierte die Menge der Trägersubstanz zwischen 0,2 und 3 mg. Die Trennung erforderte im Minimum eine Zeit von 40 Minuten. Wo es von Bedeutung war, Eigenabsorption durch die Trägersubstanz zu vermeiden, wurde das ausgefällte Kupfersulfid, an dem die Tc-Aktivität adsorbiert war, mit Natronlauge gekocht. Im Gegensatz zum Kupfersulfid ging hierbei der grösste Teil des Technetiums in Lösung. Nach Filtrierung konnte es dann elektrolytisch auf Kupfer-, bzw. Molybdänfolien niedergeschlagen werden. Eine eingehende Beschreibung der chemischen Trennung ist andernorts<sup>14</sup>) erschienen. In einzelnen Fällen erfolgte die Abtrennung des Tc auch durch Verdampfung seines leichtflüchtigen Oxydes.

302

#### IV. Die Isotope der Perioden von 43,5, 51,5 und 52,5 Minuten.

### 1. Einleitung.

Von all unsern Untersuchungen am Tc erwiesen sich diejenigen am Tc<sup>94</sup> als die kompliziertesten. So musste z. B. bei fast sämtlichen Experimenten die von den 20 und 104-Stunden-Perioden herrührende Aktivität berücksichtigt werden, die schon gleich zu Beginn der Messungen sich störend bemerkbar machte. Zur genauen Bestimmung dieses Anteils wurden einige Messreihen über ein Mehrfaches der Zeit ausgedehnt, die sonst nötig gewesen wäre. Viel



Zerfallskurven der 43,5 Min.-, 51,5 Min.- und 52,5 Min.-Perioden.

mehr Schwierigkeiten bereitete aber, dass sich in unsern Tc-Präparaten drei Aktivitäten von sehr ähnlicher Halbwertszeit überlagerten. Es entstehen nämlich bei den Bestrahlungen mit Protonen von 6,8 MeV Energie 1. der Positronenstrahler Tc<sup>94</sup> mit 52½ Min. Halbwertszeit, 2. ein Isomer mit 51½ Min. Halbwertszeit und 3. ein K-Strahler von 43½ Min. Was die  $52\frac{1}{2}$  Min.-Periode betrifft, liegt an früheren Arbeiten nur eine Mitteilung von Ewing, PERRY und McCREARY<sup>15</sup>) vor, dass bei Bestrahlung von Molybdän mit 6,5 MeV-Protonen eine  $\beta$ -Aktivität mit 53  $\pm$  3 Min. Halbwertszeit und einer Maximalenergie der Partikeln von 2,3 MeV entsteht, die von  $\gamma$ -Strahlung begleitet ist. Nach Untersuchungen von KUNDU und Pool<sup>4</sup>) ist das Isotop Tc<sup>92</sup>, das durch Protonenbestrahlung aus Mo<sup>92</sup> entsteht, ein K-Strahler und besitzt eine Halbwertszeit von 47 Min. Auf ein Röntgenquant werden 0,145  $\gamma$ -Quanten von 1,5 MeV Energie und 0,05 Elektronen einer Energie von 0,54 MeV emittiert. Positronen haben diese beiden Forscher nicht beobachtet.

### 2. Halbwertszeit und $\beta^+$ -Spektrum des Positronenstrahlers $Tc^{94}$ .

Um die Halbwertszeit der Positronenemission zu bestimmen, wurden mittels eines Magneten die Positronen aus der komplexen Strahlung ausgesondert. Der zeitliche Abfall konnte ohne merklichen Untergrund, der auf längerlebige Positronenaktivitäten schliessen liesse, über zehn Halbwertszeiten hinweg gemessen werden. Als Periode ergab sich  $52\frac{1}{2} \pm 1\frac{1}{2}$  Min. (Fig. 1).



Das Positronenspektrum des Tc<sup>94</sup> wurde sowohl im magnetischen Halbkreisspektrographen (Auflösungsvermögen 0.8%) als auch im magnetischen Linsenspektrographen (Auflösungsvermögen 2.4%) ausgemessen (Fig. 2). Zur Herstellung der Quelle wurde der Niederschlag des verdampften Tc<sub>2</sub>O<sub>7</sub> mit Ammoniak aufgenommen und

304

dieser auf einer Zaponfolie verdunsten gelassen. Die mit einer zweiten Folie bedeckte Quelle besass eine Massenbelegung von 1 mg/cm<sup>2</sup>. Die Maximalenergie von  $2,41 \pm 0,02$  MeV wurde bestimmt einerseits aus der Extrapolierung der Geraden des Fermi-Diagramms, zudem auch noch direkt gemessen, wobei der Nulleffekt durch eine Koinzidenzschaltung herabgesetzt wurde.



Fermi-Diagramm des Positronen-Spektrums der 52,5 Min.-Periode.

Das Fermi-Diagramm (Fig. 3) zeigt im Bereich hoher Energien einen geradlinigen Verlauf. Die bei ungefähr 0,9 MeV einsetzende Abweichung rührt zum grossen Teil von der Streuung im Präparat her. Hinzu kommt die Überlagerung eines zweiten Teilspektrums, dessen Existenz auch aus der Analyse der Kern- $\gamma$ -Strahlung folgt.

#### 3. Die Koinzidenzen der Positronenstrahlung mit Kern-y-Strahlung.

Zur Prüfung der Frage, ob die Positronenemission mit gleichzeitiger Ausstrahlung von Kern- $\gamma$ -Quanten verbunden sei, wurde ein einfacher kleiner Halbkreisspektrograph gebaut. Zugunsten einer hohen Lichtstärke wurde auf ein gutes Auflösungsvermögen verzichtet. In der Nähe der Quelle befand sich ein  $\gamma$ -Zählrohr. Die Anordnung wurde mit der Radioaktivität des Zn<sup>63</sup> <sup>16</sup>) geeicht, dessen Maximalenergie der Positronen ziemlich ähnlich ist und dessen Zerfallsschema aus andern Messungen aufgeklärt war. Während im Falle des Zn<sup>63</sup> nur die den beiden energiearmen Teilspektren zugehörigen Positronen (= 9%) mit Kern- $\gamma$ -Strahlung koinzidierten, zeigt sich hier dass alle Positronen von Kern- $\gamma$ -Quanten begleitet sind (Fig. 4). Heinrich Medicus, Peter Preiswerk und Paul Scherrer.



Fig. 4.  $\beta^+-\gamma$ -Koinzidenzen im Magnetfeld (zum Vergleich rechts Zn<sup>63</sup>).

# 4. Die Energien der $\gamma$ -Strahlung.

Eine Messung der Halbwertszeit der  $\gamma$ -Strahlung zeigt, dass hier, im Gegensatz zur entsprechenden Messung der Positronen, der Beitrag der langlebigen Komponenten so beträchtlich ist, dass nach Subtraktion dieser Komponenten eine weitere Zerlegung nach den drei benachbarten Halbwertszeiten nicht mehr mit genügender Genauigkeit vorgenommen werden kann. Eine Untersuchung der



Konversionslinien der 43,5- und 52,5-Min.-Perioden, gemessen mit dem Halbkreisspektrographen.

γ-Strahlung hat deshalb so fortzuschreiten, dass in bezug auf ihre Halbwertszeiten diese drei Aktivitäten zu einer einzigen zusammengefasst werden, von welcher die Energien und Intensitäten ihrer Komponenten bestimmt werden. Durch Kombinierung dieser Resultate mit andern Messungen wird es sodann möglich, die einzelnen Anteile bestimmten Perioden zuzuordnen.

Zur Bestimmung der Energie der einzelnen Komponenten der  $\gamma$ -Strahlung sind Absorptionsmessungen an einem komplexen Spektrum unbrauchbar; sie sind aber sehr wertvoll zur Festlegung der Intensitätsverhältnisse.

Verschiedene Methoden der Energiemessung gelangten zur Anwendung. Für Energien unter 1 MeV ist die Ausmessung der Konversionslinien der betreffenden Strahlung am geeignetsten (Fig. 5). In Tabelle 2 sind die aufgefundenen Konversionslinien aufgeführt.

Elektronen- energie in keV	Interpretation der Elektronenstrahlung	Energie des Übergangs in keV
13,3	K-Konversion, Tc	$34,3\pm0,5$
15,0	Augerelektronen Mo	K—LL
15,6	Augerelektronen Tc	K—LL
16,8	Augerelektronen Mo	K—LM
17,3	Augerelektronen Tc	K—LM
31,9	L-Konversion, Tc	$34,7\pm0,4$
34,3	M-Konversion, Tc	$34,8\pm0,5$
35,1	N-Konversion, Tc	$35,2\pm1,0$
369	K-Konversion, Mo	$389 \pm 5$
386	L-Konversion, Mo	$389 \pm 5$
854	K-Konversion, Mo	$874 \hspace{0.1in} \pm 10$

Tabelle 2.Elektronenlinien der kurzen Perioden des Tc.

Im Bereiche höherer Energien ist die Ausmessung der Comptonund Photoelektronen, die in einem Sekundärstrahler ausgelöst werden, günstiger.

Die Ausmessung der Photoelektronen erfolgte im magnetischen Linsenspektrographen<sup>17</sup>). Da sich gezeigt hatte, dass das zur Bestrahlung kommende Molybdän keine spürbaren Verunreinigungen enthielt, verzichteten wir hier auf eine chemische Abtrennung des Technetiums vom Molybdän, um durch den Zeitgewinn die kurzen Perioden möglichst stark zu erhalten. Das bestrahlte Molybdän wurde mit Königswasser oberflächlich abgelöst, die Lösung auf dem Wasserbad zur Trockne eingedampft und der Rückstand als Quelle verwendet. Der Sekundärstrahler für die Auslösung der Comptonelektronen bestand aus Aluminium. Um aber zu kleinen und dennoch genügenden Wandstärken zu gelangen, steckte das Präparat im Innern des Aluminiums in einer Goldhülse, in deren Wandung Heinrich Medicus, Peter Preiswerk und Paul Scherrer.

die Positronenannihilation erfolgte. Zur Ausmessung der Photoelektronenlinien war das Aluminium mit einer 17  $\mu$  dicken Bleifolie umgeben.

In Fig. 6 ist das Spektrum der Comptonelektronen der kurzen Perioden aufgetragen. Um die Beiträge der längerlebigen Aktivitäten zu eliminieren, war es notwendig, für jeden einzelnen Messpunkt eine Kurve des zeitlichen Abfalles aufzunehmen und diese zu zerlegen. Die Kurve zeigt mehrere sich überlagernde kontinuierliche Spektren, deren Maximalenergien auf Energien der  $\gamma$ -Strahlung von 0,5, 0,9, 1,5, 1,8, 2,73 ± 0,08 und 3,27 ± 0,15 MeV



Comptonelektronenspektrum der 43,5- und 52,5-Min.-Perioden des Tc, undividierte Form.

schliessen lassen. Die erste dieser Komponenten ist die Vernichtungsstrahlung. Bei der Ausmessung der Photolinien ergaben sich für die beiden mittleren Energien die genaueren Werte von  $1,51 \pm 0,05$  MeV und  $1,85 \pm 0,05$  MeV. Von den beiden energiereichsten Strahlen konnten keine Photoelektronen mehr beobachtet werden.

Der Nachweis der harten Komponente von 3,27 MeV gelang auch mit der von Bothe angegebenen Methode durch Messung der Reichweite der in einer Aluminiumplatte ausgelösten Sekundärelektronen. Die Auswertung erfolgte in der von BLEULER und ZÜNTI<sup>18</sup>) angegebenen Weise.

# 5. Die relativen Intensitäten der Komponenten der $\gamma$ -Strahlung.

Zur Bestimmung der Intensitätsverhältnisse der einzelnen Komponenten wurde die Kurve der Absorption der  $\gamma$ -Strahlung in Blei zerlegt. Diese Methode ist anwendbar, wenn die Energien der einzelnen Komponenten bekannt sind. Dabei dürfen nicht die theoretischen Absorptionskoeffizienten zugrunde gelegt werden, sondern es müssen die aus Eichmessungen für die betreffende Anordnung experimentell bestimmten Werte Anwendung finden.



Absorption der y-Strahlung in Blei. Messung mit Messing-Zählrohr.

Auch hier wurde für jede einzelne Absorberdicke eine zeitliche Abfallskurve aufgenommen, deren Zerlegung es gestattete, eine Absorptionskurve für die kurzen Perioden zu erhalten.

Da in unserm Fall sechs Komponenten vorhanden sind, so scheint der Willkür in der Zerlegung ein weiter Spielraum gelassen. Tatsächlich kann er aber wesentlich eingeengt werden: Einerseits wurde die Zerlegung an zwei verschiedenen Absorptionskurven durchgeführt, von denen die eine mit einem Zählrohr mit Wismutkathode, die andere mit einem solchen mit Messingkathode (Fig. 7) aufgenommen war. Da nämlich die Energieabhängigkeit der Sensibilitäten dieser Zählrohrtypen<sup>19</sup>) verschieden ist, verlaufen auch die Absorptionskurven anders. Die relativen Zählrohrsensibilitäten und die Absorptionskoeffizienten für die 2,7 und die 3,2 MeV-Strahlung unterscheiden sich praktisch nicht. Es empfiehlt sich deshalb, zur Zerlegung vorerst diese beiden Komponenten zusammenzufassen und erst nachträglich auf Grund der Comptonelektronenspektren die Aufteilung vorzunehmen.

Unabhängig von diesen Zerlegungen lässt sich mittels Koinzidenzmessungen an der Annihilationsstrahlung, die die stärkste Komponente bildet, deren Beitrag zur Zählrohrstosszahl bei Absorberdicke Null bestimmen. Die Abfallskurven der Einzelstösse und der Koinzidenzen wurden in zwei Stellungen gemessen (Winkel zwischen Zählrohr 1, Quelle und Zählrohr 2 180°, bzw. 120°). Bei diesen Versuchen befand sich die Quelle in einer Messingkapsel mit 2 mm Wandstärke und 6 mm äusserem Durchmesser. Die Wismutzählrohre waren mit 0,5 mm dicken Bleizylindern umgeben und waren von der Quelle je 14 cm entfernt. Prinzipiell könnte aus der Koinzidenzzahl unter Berücksichtigung des Raumwinkels und der Sensibilität der Zählrohre sowie der Absorption der Strahlung und der Verlustrate des Koinzidenzverstärkers die Anzahl der Vernichtungsquanten berechnet werden. Aus der Zahl der Einzelstösse lässt sich in ähnlicher Weise die totale Anzahl der y-Quanten bestimmen. U. a. wegen der endlichen Ausdehnung der Quelle wären aber Korrekturen anzubringen, die nicht einfach überschaut werden können. Aus diesem Grunde ist eine Eichung der Versuchsanordnung mit dem Positronenstrahler C<sup>11</sup>, der keine Kern-γ-Strahlung emittiert, vorzuziehen. Das aus dieser Eichmessung bestimmte Verhältnis der Koinzidenzen zu den Einzelstössen der Annihilationsstrahlung wurde nun für die Messung am Tc<sup>94</sup> verwendet. Das Ergebnis dieser Messungen ist in Tabelle 3 wiedergegeben. Das Verhältnis der Zählrohreinzelstösse der Vernichtungsstrahlung zu dem der gesamten y-Strahlung beträgt demnach  $0,396 \pm 0,020$ .

	Koi	nzidenzen/2	Einzelstosszahlen/Min.	
	180º- Stellung	120°- Stellung	Differenz	(Mittel beider ZR)
C11	$84\pm3$	4	$80\pm3$	$(23,7 \pm 0,3) \cdot 10^3$
Te	$38\pm1$	2	$36\pm1$	$(26,8 \pm 0,4) \cdot 10^3$
Annihilations- strahlung allein Kern-γ-Str.		v	$36\pm1$	$\frac{(10,6\pm0,6)\cdot10^3}{(16,2\pm0,8)\cdot10^3}$

Tabelle 3.

Eine Zusammenstellung der Ergebnisse aus der Zerlegung der Absorptionskurven und aus der Koinzidenzmessung ist in Tabelle 4 enthalten. Dabei ist zu erwähnen, dass in den Angaben über die Zählrohrsensibilität die Absorption der  $\gamma$ -Strahlung in der Zählrohrwand und der Präparatumhüllung (5 mm Aluminium zur Vernichtung der Positronen) einbezogen sind.

		in l	Blei.		12	
Komponente MeV	Absorp Koeffizie	otions- ent cm <sup>-1</sup>	Messing-Zählrohr			
	theor.	exp.	relat. Stosszahl	Sensibilität in <sup>0</sup> / <sub>00</sub>	relat. Anzahl Quanten	
0,387	2,9	2,73	3,75	1,10	3,4	
0,511	1,70	1,57	49,4	1,65	30,0	
0,874	0,92	0,82	72,0	3,5	20,7	
1,51	0,58	0,50	35,0	7,1	4,95	
1,85	0,52	0,435	22,3	9,1	2,45	
2,73 3,27	0,47	0,390	4,2	13,5	0,31	

Tabelle 4.

Zerlegung der mit Messing-Zählrohr gemessenen Absorptionskurve der  $\gamma$ -Strahlung

# 6. Die Röntgenstrahlung.

Das Verhältnis der Intensität der Röntgenstrahlung zu derjenigen der Kern-y-Strahlung sowie zur Zahl der Positronen kann durch eine einfache Absorptionsmessung kaum ermittelt werden, da die intensive y-Strahlung in den Absorbern so viel Sekundärelektronen auslöst, dass zunächst mit zunehmender Absorberdicke sogar ein Ansteigen der Stosszahl im Zählrohr erfolgt. Abgesehen davon würde die starke Positronenstrahlung eine solche Messung sehr stark stören. Aus diesem Grunde wurde die Quelle in ein starkes Magnetfeld gebracht, welches die Positronen weglenkte. Auch die Absorber befanden sich noch im Magnetfeld, so dass die daraus ausgelösten Elektronen ebenfalls nicht ins Zählrohr, das sich ausserhalb des Magnets befand, eintreten konnten. Der Strahlengang der Quanten war begrenzt durch Blenden aus Blei, die derart geformt waren, dass die wirksame Öffnung für Röntgenstrahlung und  $\gamma$ -Strahlung möglichst gleiche Grösse hatte, d. h. es wurde darauf geachtet, dass die Blenden auch für die harte v-Strahlung eine scharfe Grenze bildeten. Zur Messung des Nulleffektes konnte das erste Loch mit einem Bleizapfen genügender Länge geschlossen werden. Die Messung der Absorptionskurve der Röntgenstrahlung in Aluminium wurde mit einem Aluminiumzählrohr von 0,12 mm Wandstärke vorgenommen (Fig. 8). Für diese Zählrohrart ist die Sensibilität für K-Strahlung des Molybdän von SAURER<sup>20</sup>) untersucht worden. Für den hier in Betracht kommenden Teil des Zählrohres beträgt sie 0,67%. Der in diesem Zählrohr durch die  $\gamma$ -Strahlung verursachte Untergrund interessierte hier nicht und wurde abgezählt. Zur Messung der Intensität der  $\gamma$ -Strahlung trat an die Stelle des dünnwandigen ein Messingzählrohr mit 1,8 mm dicker Wand, so dass von aussen her keine Sekundärelektronen ins Innere eindringen konnten. Hier wurden keine Absorptionsmessungen vorgenommen, da der Verlauf der Absorption bereits aus andern Untersuchungen bekannt ist. Da die Quelle kleine Dimensionen besass und frei an Fäden aufgespannt war, war es möglich, praktisch nur Kern- $\gamma$ -Strahlung zu messen, da die Vernichtung der Positronen überwiegend ausserhalb des Raumes erfolgte, von dem aus die Vernichtungsstrahlungsquanten ins Zählrohr hätten dringen können.



Absorption der Röntgenstrahlung in Al.

Zu beiden Seiten der Quelle waren nämlich Aluminiumwände angebracht, die verhinderten, dass die Positronen auf ihren Kreisbahnen im Magnetfeld etwa wieder auf das Präparat stiessen und dort vernichtet würden. Die Stärke des Magnetfeldes war darum auch so gewählt, dass nur ein kleiner Bruchteil energiearmer Positronen volle Kreise beschreiben konnte. Wurde jedoch die Quelle mit Blei allseitig abgedeckt, kam ausser der Kern- $\gamma$ -Strahlung nun auch die Annihilationsstrahlung im Zählrohr zur Registrierung. Auf diese Weise ergab sich wiederum eine Möglichkeit zur Bestimmung des Verhältnisses der beiden Arten von  $\gamma$ -Strahlung. Um den Einfluss des zeitlichen Abfalls eliminieren zu können, wurden diese verschiedenen Messungen mehrmals im Turnus wiederholt. Bei der Berechnung der Intensitätsverhältnisse musste selbstverständlich die Anwesenheit der andern Perioden, sowie die Absorption der Röntgenstrahlung im Präparat, in der Luft und in der Zählrohrwand, und auch die Absorption der  $\gamma$ -Strahlung in der Wand des Messingzählrohres sowie in der Umhüllung der Quelle berücksichtigt werden. Die Auswertung ergibt, dass auf ein 0,874-MeV- $\gamma$ -Quant 1,42 X-Quanten und 0,71 Positronen kommen. Da vom Atom Röntgenquanten beim K-Einfang und bei der Konversion in der K-Schale emittiert werden, kann uns deren Intensität nur über die Summe beider Prozesse Auskunft geben. Es ist dabei noch die Fluoreszenzausbeute der K-Strahlung des Molybdäns in Rechnung zu setzen, die nach HARMS und COMPTON<sup>21</sup>) <sup>22</sup>) 70% beträgt und für Technetium als eben so gross angenommen werden kann.

# 7. Die Aufteilung der Aktivitäten in Einzelperioden.

Nach der Untersuchung aller der Komponenten, die zu den drei in bezug auf ihre Halbwertszeit ähnlichen Aktivitäten gehören, konnte daran gegangen werden, ihre Zuordnung zu den einzelnen Perioden vorzunehmen.

# a) Das 51,5 Minuten-Isomer des Tc.

Bei der Untersuchung der 52,5 Minuten-Periode des Tc<sup>94</sup> war uns jeweilen das grosse Ausmass an Röntgenstrahlung aufgefallen. Zwar wird von Positronenstrahlern bekanntlich immer Röntgenstrahlung, herrührend vom konkurrierenden K-Einfang emittiert, aber die Anzahl dieser Quanten lässt sich abschätzen und ist wesentlich kleiner als die beobachtete.

Im Halbkreisspektrographen stellten wir sehr intensive Elektronenlinien bei 13,3, 31,9 und 34,3 keV fest, deren Intensität mit der Periode der Positronen abnahm (Fig. 9). Die Quellen, die zur präzisen Ausmessung dieser Linien verwendet wurden, waren elektrolytisch hergestellt, indem bei einer Badspannung von 3,5 V die die Aktivität enthaltende *n*-Natronlauge während einer Stunde bei einer Stromstärke von 9 mAmp. elektrolysiert wurde. Die Anode bestand aus einem Platinblech, als Kathode diente eine 12 mm lange und 1,2 mm breite Kupferfolie, deren Rückseite mit Paraffin bedeckt war.

Die Energiedifferenzen zwischen den Linien legen dar, dass diese die K-, L- und M-Elektronen einer im Element 43 konvertierten  $\gamma$ -Linie von 34,4  $\pm$  0,4 keV sind. Eine innere Umwandlung im Molybdän kommt nicht in Frage, da die Energiedifferenzen hierfür zu gross sind. Der Nachweis, ob die Elektronen dem Tc- oder dem Mo-Atom entstammen, kann auch durch die Analyse der Röntgenstrahlung erfolgen, die bei der Wiederauffüllung der Elektronenhülle emittiert wird. Untersuchungen im Röntgenspektrographen mit gekrümmtem Kristall, für deren Durchführung wir Herrn MARMIER zu Dank verpflichtet sind, haben ergeben, dass neben der Gruppe der K-Linien des Molybdän stärkere Linien des Elementes 43 auftreten<sup>23</sup>). Für die Aufnahmen wurden jeweilen die eine Stunde



Fig. 9.

Konversionselektronenlinien des isomeren Übergangs von 34,4 keV Energie.

bestrahlten Targets gleich nach der Bestrahlung in den Spektrographen gebracht und  $1\frac{1}{2}$  Stunden dort belassen. Dies wurde sechsmal wiederholt, um eine genügende Schwärzung der Platten zu erzielen. So wurde auch vermieden, dass die längerlebigen Aktivitäten, die auch K-Strahler sind, allzu viel zur Schwärzung beitrügen.

Die am nächsten liegende Interpretation war nun die, dass diese Linien einen isomeren Übergang repräsentierten, auf welchen dann die Positronenemission folge. Der  $\beta^+$ -Zerfall, der an und für sich

314

eine kürzere Halbwertszeit haben könnte, müsste dann im Gleichgewicht mit dem vorangehenden isomeren Übergang sein und würde darum mit der gleichen Periode beobachtet.

Aufschlussreich musste das Verhältnis der Anzahl der Konversionselektronen des 34 keV-Überganges zur Zahl der Positronen sein. Die geringe Energie der ersteren machte diese quantitativen Untersuchungen schwierig, da der Absorption Rechnung getragen werden musste. Für eine Ausmessung des Positronenspektrums waren die elektrolytisch hergestellten Präparate zu schwach. Nach Beendigung der Elektrolyse wurde deshalb aus der Lösung, die den grössten Teil der Aktivität noch enthielt, das Tc wieder mit etwas Kupfersulfid ausgefällt und zur Messung des Positronenspektrums in den Spektrographen gebracht. Quellenlänge und Breite waren genau dieselben wie zuvor. Ausserhalb des Spektrographen wurden die Stärken beider Präparate durch Messung ihrer y-Strahlung miteinander verglichen. Die geringe Energie der Elektronen erforderte bei der Auswertung eine Korrektur in bezug auf die Absorption der das Zählrohr abschliessenden Zaponlackfolie. Dieser Einfluss wurde bestimmt aus vergleichenden Messungen mit ein und zwei Folien und Extrapolation auf die Dicke Null. Beim Vergleich zwischen sehr weicher und harter Elektronenstrahlung ist auch die verschieden starke Rückstreuung zu berücksichtigen. Für die weichen Konversionselektronen wirkte die 20  $\mu$  dicke Kupferfolie als unendlich dicke Unterlage, während die Rückstreuung der Positronen durch die geringe Menge Trägersubstanz und das Filterpapier im ganzen vernachlässigbar war. Nach BURTT<sup>24</sup>) beträgt der Rückstreukoeffizient für Cu 1,48, so dass die gemessene Zahl der Elektronen auf 68% zu reduzieren ist.

Die graphische Integration dieser Linien und des Positronenspektrums unter Berücksichtigung der erwähnten Korrekturen und des Stärkeverhältnisses der beiden Quellen zeigte, dass die Anzahl der Konversionselektronen 3,0mal grösser ist als die der Positronen. Zum selben Ergebnis führten auch Messungen der Konversionslinien und der Positronen mit einem mit 0,27 mg Kupfersulfid auf dünnes Seidenpapier gefällten Präparat. Die Breite der Linien war wegen der Bremsung der Elektronen im Träger ziemlich erheblich. Ein grosser Teil der K-Konversionselektronen besass darum nur noch so wenig Energie, dass der Einfluss der Zählrohrfolie für eine quantitative Messung viel zu gross geworden wäre. Aus diesem Grund wurde hier nur die Fläche der L- und M-Konversionslinien ausgemessen und daraus die Intensität der K-Linie unter Verwendung der Messungen mit dem elektrolytisch hergestellten Präparat berechnet. Es ist anzunehmen, dass die Vermehrung der Anzahl der gezählten Elektronen infolge Rückstreuung wieder wettgemacht werde durch die Absorptionsverluste im Träger, so dass in dieser Beziehung keine Korrektur der Stosszahl angebracht wurde.

Aus anderen Messungen am Tc<sup>94</sup> ist ersichtlich, dass 73% der Zerfälle durch Positronenemission, der Rest durch K-Einfang vor sich gehen. Daraus folgt, dass die Zahl dieser Konversionselektronen mehr als doppelt so gross ist wie die Zahl der Umwandlungen durch Positronenemission und K-Einfang. Ein Zusammenhang scheint deshalb nicht zu bestehen, es sei denn, man nehme an, dass es sich in Wirklichkeit um zwei und nicht nur um eine  $\gamma$ -Linie handle, deren Energien aber dieselben sind. Im Hinblick darauf wurde die K-Linie nochmals ausgemessen und nach einer Aufspaltung gesucht. Die Halbwertsbreite der K-Linie des mit aller Sorgfalt hergestellten Präparates betrug diesmal nur 0,8%. Eine Energiedifferenz von 70 eV der beiden K-Linien hätte darum noch erkennbar sein müssen. Die Suche verlief aber negativ.

Die Unabhängigkeit des isomeren Überganges von der Positronenaktivität konnte noch erhärtet werden durch Versuche bei Bestrahlung mit Protonen verschiedener Energie. Für die oben beschriebenen Untersuchungen waren die Molybdäntargets mit Protonen der in unserm Zyklotron erreichbaren Maximalenergie von 6,8 MeV bestrahlt worden. Bei Reduzierung der Protonenenergie um 1,9 MeV, was durch Abdecken des Molybdäns mit 0,15 mm dicken Aluminiumblech erreicht wurde, verminderte sich das Verhältnis der Positronen zu den Konversionselektronen des Isomers um mehr als einen Faktor 15, d. h. es wurden überhaupt keine Positronen mit Sicherheit mehr nachgewiesen. Dies wird verständlich, wenn man das später beschriebene Zerfallsschema des Tc<sup>94</sup> zugrunde legt. Da die Zerfallsenergie 4,32 MeV beträgt, sind zur Erzeugung des Tc<sup>94</sup> durch einen (p, n)-Prozess Protonen mit 5,08 MeV Energie notwendig. Für eine Erzeugung durch Deutonen mittels der (d, 2n)-Reaktion berechnet sich ein Schwellenwert von 7,27 MeV. Das Isomer konnte aber schon bei einer Bestrahlung mit Deutonen von  $6,4 \pm 0,4$  MeV erzeugt werden\*).

Grosse Sorgfalt wurde auch der genauen Bestimmung der Halbwertszeit des isomeren Überganges gewidmet. Hierzu wurde im Linsenspektrometer die L-Konversionslinie während 5 Stunden

<sup>\*)</sup> Herstellung und Untersuchung dieses deutonenbestrahlten Präparates wurden gelegentlich eines Aufenthaltes des einen von uns (H. M.) am Nobelinstitut für Physik in Stockholm vorgenommen. Wir danken Herrn Prof. Manne Siegbahn für die erwiesene Gastfreundschaft und den Mitgliedern der dortigen Zyklotrongruppe für ihre Hilfe.

mehrmals genau ausgemessen. Als Halbwertszeit des isomeren Uberganges ermittelten wir  $51,5 \pm 1,0$  Min. (Fig. 1), während wir für die Positronenemission, wie oben schon mitgeteilt,  $52,5 \pm 1,5$  Min. gefunden hatten. Die Fehler wurden relativ gross angesetzt, um der Korrektur in bezug auf die Dead-time und allenfalls Alterungseinflüssen des Zählrohrs Rechnung zu tragen.

Die Multipolordnung eines isomeren Überganges kann bekanntlich aus seiner Konversion und seiner Halbwertszeit berechnet werden. In Tab. 5 sind für die 34,4 keV-Strahlung des Tc bei Annahme verschiedenen Multipolcharakters auf Grund der Arbeiten

Multipol-	Konversionsve	rhältnis $\alpha_K : \alpha_L$	Halbwertszeit		
ordnung der Strahlung	elektrische Strahlung	magnetische Strahlung	elektrische Strahlung	magnetische Strahlung	
22	1,0	3,8	$0,2 \cdot 10^{-3} \sec$	2 sec	
2 <sup>3</sup>	0,11	2,4	0,04 sec	160 h	
24	0,012	1,5	130 min	9000 a	
$2^{5}$	0,003		110 a		

Konversion	und l	Halbw	ertsze	eit für	Übergänge	im	Тc
	V	on 34,4	4 keV	Energ	gie.		

Tabelle 5.

von DANCOFF und MORRISON<sup>25</sup>), HEBB und NELSON<sup>26</sup>) und AXEL und DANCOFF<sup>27</sup>) das Verhältnis der Konversion in K-und L-Schale und die Lebensdauer des konvertierten Überganges eingetragen. Bei der Berechnung der Halbwertszeit der magnetischen Übergänge wurde angenommen, dass die Zerfallskonstante des unkonvertierten Überganges gleich gross sei wie diejenige des elektrischen Überganges der nächsthöheren Ordnung. Bekanntlich ist aber die Übergangswahrscheinlichkeit bei magnetischer Strahlung kleiner Energie verhältnismässig grösser, so dass zu erwarten ist, dass die berechneten Halbwertszeiten für die magnetischen Übergänge eher zu lang herauskommen.

Die richtige Grössenordnung für die Lebensdauer erhält man demnach für elektrische 2<sup>4</sup>-Polstrahlung. Das beobachtete Konversionsverhältnis für die Konversion in K- und L-Schale beträgt  $1,2 \pm 0,3$ . Der Vergleich mit der Theorie zeigt, dass hier also eine Mischung von magnetischer 2<sup>3</sup>-Polstrahlung mit elektrischer 2<sup>4</sup>-Polstrahlung vorliegen muss. Die von BERTHELOT<sup>28</sup>) angegebene Formel zur Berechnung der Lebensdauer führt für elektrische 2<sup>4</sup>-Polstrahlung auf 2 Min., für magnetische 2<sup>3</sup>-Polstrahlung auf 2,4 Stunden. Die Gesamtdrehimpulsdifferenz  $\Delta$ I muss bei diesem isomeren Übergang demnach gleich 3 sein, und ein Paritätswechsel findet nicht statt.

# b) Die Trennung der 52,5 Min.-Positronenperiode und der 43,5 Min.-Periode des Tc<sup>92</sup>.

In einer früheren vorläufigen Mitteilung<sup>11</sup>) hatten wir auch die 0,389 MeV- $\gamma$ -Linie der Periode des Tc<sup>94</sup> zugeordnet. Diese Angabe beruhte damals auf Messungen mit dem lichtschwachen Halbkreisspektrometer, mit dem eine genaue Halbwertszeitbestimmung nicht möglich war. Da sich bei unsern vergleichenden Messungen mit verschiedener Protonenenergie diese Konversionslinie weder wie die Positronenaktivität, noch wie das Isomer verhielt, untersuchten wir die Halbwertszeit auch dieser Linie im Linsenspektrometer. Um den Untergrund, der vom Positronenspektrum herrührt, möglichst herabzusetzen, wurde die Target mit verringerter Protonenenergie bestrahlt. Als Halbwertszeit dieser Konversionslinie ergab sich 43,5  $\pm$  1 Min. (Fig. 1). Diese Linie scheint demnach der von Kundu und Pool<sup>4</sup>) beschriebenen Periode von 47 Min. anzugehören.

Die  $\gamma$ -Strahlung von 0,874 MeV verschwindet zusammen mit den Positronen bei Bestrahlungen mit niedriger Protonenenergie. Sie wird deshalb der 52,5 Min.-Periode zugeordnet.

Von der  $\gamma$ -Linie von 1,51 MeV Energie versuchten wir ebenfalls, die Halbwertszeit zu bestimmen, da KUNDU und Pool eine  $\gamma$ -Strahlung von 1,5 MeV der 47 Min.-Periode zuordneten. Da bei so hohen Energien eine Bestimmung durch Ausmessung der Konversionselektronen kaum mehr in Frage kommt, da gerade in diesem Energiebereich das Positronenspektrum eine sehr grosse Intensität besitzt, versuchten wir, die Halbwertszeit der aus Blei ausgelösten Photoelektronen zu bestimmen. Da aber diesen Photoelektronen noch die Comptonelektronenspektren der härteren Komponenten unterlagert sind, war es nicht möglich, die Periode dieser recht schwachen Linie genauer zu bestimmen. Gleichwohl darf aber vermutet werden, dass diese Linie mit der von KUNDU und Pool angegebenen identisch ist.

Da die  $\gamma$ -Strahlung, gemessen hinter 9 cm Blei, wo praktisch nur noch die Komponenten von rund 1,5, 1,8, 2,7 und 3,2 MeV ins Gewicht fallen, mit einer Periode von 51 Min. abfällt, ist anzunehmen, dass der überwiegende Teil dieser Strahlungen zur Periode der Positronen gehört. Dass Motta und Bovd<sup>5</sup>) diese harten Komponenten nicht bemerkten, überrascht nicht, da sie die Absorptionsmessung der  $\gamma$ -Strahlung nur bis zu Absorberdicken von knapp 1,5 cm Blei ausführten. Da im Positronenspektrum eine Abweichung vorhanden ist, die auf eine  $\gamma$ -Strahlung einer Energie zwischen 1,5 und 1,9 MeV schliessen lässt, kann die 1,8 MeV-Linie dieser Aktivität zugeschrieben werden. Die Linien hoher Energie von 2,7 und 3,2 MeV können auf keinen Fall dem Tc<sup>92</sup> zugeordnet werden, da dessen Zerfallsenergie dann so gross sein müsste, dass ein grosser Teil der Zerfälle durch Positronenemission erfolgen müsste, was Kundu und Pool nicht hätte entgehen können.

### c) Das Termschema des Tc<sup>94</sup>.

Aus den Koinzidenzmessungen im Magnetfeld wissen wir, dass mit jedem Positron gleichzeitig Kern-y-Strahlung emittiert wird; der Grundzustand des Molybdäns kann demnach nicht direkt erreicht werden. Da die weitaus stärkste Kern-y-Komponente diejenige von 0,87 MeV ist, wird der grösste Teil der Positronenübergänge auf ein Niveau führen, das um diesen Energiebetrag über dem Grundzustand liegt. Die Komponenten der Gammastrahlung von 1,85 und 2,73 MeV lassen sich am einfachsten als Übergänge von einem 2,73 MeV über dem Grundzustand liegenden Niveau nach dem oben erwähnten Niveau, bzw. nach dem Grundzustand erklären. Eine Umwandlung des Tc, die über das 2,73 MeV-Niveau führt, wird ausser durch K-Einfang auch durch Emission von Positronen einer Maximalenergie von 0.56 MeV (= 2.41 - 1.85 MeV) erfolgen. Das Fermi-Diagramm lässt zwar ein Partialspektrum von sogar 0,9 MeV Maximalenergie vermuten, was sich sehr gut mit der y-Strahlung von 1,51 MeV Energie kombinieren liesse (2,41-1,51 = 0.90 MeV). Bei nicht extrem dünnen Präparaten (die Massenbelegung der verwendeten Quelle inklusive der als Träger und Bedeckung dienenden Zaponfolien betrug 1 mg/cm<sup>2</sup>) setzen aber die Abweichungen von der theoretischen Form des Spektrums, soweit sie durch die Rückstreuung verursacht sind, im allgemeinen in der Nähe des Intensitätsmaximums ein, das in unserm Falle gerade im Bereich von 0,9 MeV liegt. Weiter ist aus den Messungen von KUNDU und Pool<sup>3</sup>) bekannt, dass die 43,5 Min.-Periode eine  $\gamma$ -Strahlung von 1,5 MeV besitzt. Da wir bei der Ausmessung der Photoelektronen nur eine Linie dieser Energie feststellten, müsste uns ihre Zuordnung zur 52,5 Min.-Aktivität als zweifelhaft erscheinen. Es ist allerdings denkbar, dass ähnlich wie beim Tc<sup>95</sup> und Tc<sup>96</sup> auch hier bei den beiden Isotopen y-Linien von praktisch der gleichen Energie auftreten, so dass dann die Abweichung im Positronenspektrum bei 0,9 MeV doch auf das entsprechende Partialspektrum zurückzuführen wäre. Die schwache Linie von 3,27 MeV

wird bei einem Übergang in den Grundzustand emittiert. Das bei 3,27 MeV liegende Niveau kann aus energetischen Gründen nur durch K-Einfang erreicht werden.

Aus der Analyse der Absorptionskurven der  $\gamma$ -Strahlung kann auf die relativen Intensitäten der einzelnen Komponenten geschlossen werden. Dies genügt, um festzulegen, wie viel Übergänge durch Positronenemission und K-Einfang zusammen auf ein bestimmtes Niveau möglich sind. Nach Møller<sup>29</sup>) kann das Ver-



# Fig. 10.

Termschema des Tc<sup>91</sup>.

Für den Positronen- und K-Übergang auf das zweitunterste Niveau müssen die Anteile lauten  $\sim 72$  %, bezw.  $\sim 13$  %.

hältnis der Übergänge durch Positronenemission zu denen durch K-Einfang berechnet werden. Für das Spektrum mit 2,41 MeV Maximalenergie beträgt es 85:15, für 0,56 MeV 4:96. Es ist dabei angenommen, dass es sich um erlaubte Übergänge handelt. Damit lässt sich nunmehr das Termschema des Tc<sup>94</sup> aufstellen (Fig. 10). Die Zahl der Positronen, die zur Erfüllung dieses Schemas nötig ist, ist mit der experimentell gefundenen zu vergleichen. Die Konkordanz ist recht befriedigend. Es lässt sich nun auch die Zahl der

320

beim K-Einfang ausgesandten K-Quanten feststellen. Die Differenz gegenüber der experimentell festgestellten Zahl rührt von den beiden andern Perioden her; erstens von der Röntgenstrahlung, die beim Isomer als Folge der innern Konversion in der K-Schale auftritt, und zweitens vom K-Einfang des  $Tc^{92}$ .

Aus diesen Unterlagen ergibt sich das Verhältnis der Zerfälle durch Positronenemission zur Zahl der  $\gamma$ -Quanten von 0,874 MeV Energie. Da aber auch das Verhältnis der Zahl der zugehörigen Konversionselektronen zur Zahl der Positronen im Halbkreisspektrographen gemessen wurde, erhält man als Konversionskoeffizienten dieser Linie bezüglich der K-Schale (0,97 ± 0,2) · 10<sup>-3</sup>. Dieser Wert stimmt mit dem für elektrische Quadrupol-, bzw. magnetische Dipolstrahlung nach RosE et al.<sup>39</sup>) berechneten (0,96.10<sup>-3</sup>, bzw. 1,03.10<sup>-3</sup>) sehr gut überein.

Die  $f \cdot t$ -Werte für Positronenemission und K-Einfang nach den drei Niveaux betragen in der Reihenfolge abnehmender Übergangsenergie 2,1 · 10<sup>5</sup>, 0,5 · 10<sup>5</sup> und ca. 2,6 · 10<sup>5</sup>. Alle diese Übergänge fallen demnach in die Kategorie der beschränkt ("unfavored") erlaubten von verhältnismässig langer Lebensdauer.

Für Tc<sup>94</sup> schlagen wir das in Fig. 10 wiedergegebene Termschema vor. Den Energieniveaux sind die wahrscheinlichen Spins und Paritäten beigefügt.

### d) Über die 43,5 Min.-Periode des Tc<sup>92</sup>.

Da das Isotop Tc<sup>92</sup>, dessen Halbwertszeit Kundu und Pool<sup>4</sup>) mit 47 Min. angegeben haben, durch eine (p, n)-Reaktion aus Molybdän entsteht, muss es auch bei unsern Messungen in guter Ausbeute auftreten. Nach den genannten Forschern ist dieses Isotop ein K-Strahler, und es tritt keine merkliche Positronenemission auf. Weil sich aber eine schwache  $\gamma$ -Strahlung von 1,5 MeV zeigt, muss die Zerfallsenergie mindestens 1,5 MeV betragen, und da anzunehmen ist, dass der grösste Teil der Umwandlungen direkt in den Grundzustand führt, sollte eine wenn auch geringe Positronenemission zu erwarten sein. Als  $\gamma$ -Strahlung wird von den zitierten Forschern nur diejenige von 1,5 MeV Energie angegeben. Ihre publizierte Absorptionskurve in Blei zeigt aber eine leichte Krümmung an, die durchaus auf die Anwesenheit einer schwachen weichen Komponente zurückgeführt werden könnte. Es darf deshalb angenommen werden, dass die von uns aufgefundene y-Strahlung von 0,389 MeV mit 43,5 Min. Halbwertszeit dieser Periode zugehört. Auf Grund der Analyse unserer Absorptionskurve beträgt die Anzahl der 0,389 MeV-Quanten rund das 0,7fache derjenigen der 1,5 MeV-Quanten. Dies ist ein Betrag, der in Übereinstimmung mit der

 $\mathbf{21}$ 

Absorptionsmessung von KUNDU und Pool stehen kann. Obwohl die Daten für die Aufstellung eines Termschemas noch recht mangelhaft sind, darf angenommen werden, dass diese 0,389 MeV-Strahlung nicht mit derjenigen von 1,51 MeV in Kaskade emittiert wird, da dann die Zerfallsenergie über 1,9 MeV betragen müsste, womit dann das Verhältnis der Umwandlungen durch Positronenemission und durch K-Einfang so gross sein müsste, dass die Positronen einer Beobachtung nicht hätten entgehen können.

Ein mutmassliches Termschema ist am Schluss der Arbeit in der vergleichenden Zusammenstellung gegeben.

## V. Die Umwandlung des Te<sup>95</sup>.

# 1. Einleitung.

Wie schon zu Beginn erwähnt, besitzt das Isotop 95 zwei isomere Zustände mit den Halbwertszeiten  $20^{n}$  und  $60^{d}$ . Bei Verwendung von Molybdän mit natürlicher Isotopenzusammensetzung ist die Untersuchung der  $60^{d}$ -Periode ohne wesentliche Behinderung durch



Absorption der Konversionselektronen der 60d- und 90d-Perioden.

andere Perioden durchzuführen, da nach dem praktisch vollständigen Abklingen der 104<sup>*h*</sup>-Aktivität des Tc<sup>96</sup> ca. 1½ Monate nach der Bestrahlung nur noch die weiche Konversionsstrahlung und die durch die innere Umwandlung verursachte Röntgenstrahlung des Tc<sup>97</sup> mit einer Halbwertzeit von 90 Tagen neben der 60<sup>*d*</sup>-Periode vorhanden sind. Die 20<sup>*h*</sup>-Periode hingegen lässt sich nur zusammen mit der viel stärker hervortretenden 104<sup>*h*</sup>-Aktivität beobachten.

322

# 2. Die 60<sup>d</sup>-Periode.

### a) Die Konversionselektronen.

Uber unsere Untersuchungen der von CACCIAPUOTI und SEGRÈ<sup>30</sup>) aufgefundenen langlebigen Aktivität, die HELMHOLZ<sup>31</sup>) als K-Strahler bestimmte, ist eine vorläufige Mitteilung andernorts<sup>32</sup>) erschienen. Wir begannen mit Messungen der Absorption der Elektronenstrahlung in Aluminium und führten sie während eines Jahres



Absorption der  $\gamma$ -Strahlung des 60 Tage-Tc<sup>95</sup> in Blei. Messung mit Messingzählrohr.

mit einem Zählrohr mit 8  $\mu$  dickem Al-Fenster durch. Sie ergaben, dass neben der Komponente mit 90 Tagen Halbwertszeit, die eine Energie von 80 keV besitzt, eine schwächere Elektronenstrahlung mit einer Energie von 180 keV vorhanden ist, deren Halbwertszeit mit 60  $\pm$  3 Tagen bestimmt wurde (Fig. 11). Unsere Messungen zeigen gute Übereinstimmung mit denen von Edwards und Pool<sup>8</sup>), Heinrich Medicus, Peter Preiswerk und Paul Scherrer.

die, nachdem wir unsere Messung beendigt hatten, publiziert wurden. Im magnetischen Halbkreisspektrographen konnte die Energie der K- und L-Konversionslinien zu 181 und 198 keV bestimmt werden, was einer Energie der  $\gamma$ -Quanten von 201 keV entspricht. Dieser Wert ist beträchtlich höher als der von KALBFELL<sup>33</sup>) mit 184 keV angegebene. Das Verhältnis der Konversion in der K- und L-Schale beläuft sich nach unsern Messungen auf 7,1  $\pm$  0,6.

## b) Die $\gamma$ -Strahlung.

Die Absorptionskurve der  $\gamma$ -Strahlung in Blei lässt sich zwar leicht in zwei Komponenten mit den Energien 0,25 und 0,84 MeV zerlegen, wie es Edwards und Pool<sup>8</sup>) vorgenommen haben; ein Vergleich der mit Wismut- und Messingzählrohren aufgenommenen



Comptonelektronenspektrum des Tc<sup>95</sup>.

Absorptionskurven (Fig. 12) zeigt aber, dass damit nicht alle Komponenten erfasst sind, weil sonst die Sensibilitätsverhältnisse der beiden Zählrohrtypen für 0,25 und 0,84 MeV-Strahlung nicht mit den aus Eichmessungen gewonnenen Werten übereinstimmten. Die Energie der  $\gamma$ -Strahlung bestimmten wir, abgesehen von der 201 keV-Komponente, mittels ihrer Compton- oder Photoelektronen im Linsenspektrographen (Fig. 13). Aus einer Goldfolie ausgelöste Photoelektronen wurden bei 490, 556, 730 und 795 keV gefunden. Sie entsprechen zwei  $\gamma$ -Linien von 570 und 810 keV. Durch ihre Comptonelektronen machte sich zudem noch eine  $\gamma$ -Linie von 1017 keV im Spektrographen bemerkbar. Dieselbe konnte auch durch Absorption der Sekundärelektronen mittels der BOTHE'schen Koinzi-

324

denzmethode nachgewiesen werden (Fig. 14). Die Intensitäten der einzelnen  $\gamma$ -Linien wurden in derselben Weise wie beim Tc<sup>94</sup> aus der Zerlegung der Absorptionskurven entnommen, die mit Messing- und Wismutzählrohren hinter Blei aufgenommen waren. Die Intensität der 201 keV- $\gamma$ -Strahlung wurde ausserdem mit einem dünnwandigen Gold-Zählrohr noch gesondert bestimmt (Fig. 15). Für die Abschätzung der sehr schwachen energiereichsten Komponente kam



Absorption der Sekundärelektronen in Aluminium.

dieses Verfahren allerdings nicht mehr in Frage, so dass hier auf die spektrographischen Messungen des Sekundärelektronenspektrums abgestellt wurde. Die Auswertung ergibt für die  $\gamma$ -Strahlung die folgenden Verhältnisse:

$$N_{201}: N_{570}: N_{810}: N_{1017} = 0,7:0,4:0,3:0,03.$$

 $\gamma$ - $\gamma$ -Koinzidenzmessungen erbrachten aus dem Verlauf der Absorption den Beweis, dass die 201 keV-Strahlung mit härterer Strahlung gekoppelt ist, und aus der Grösse der Koinzidenzrate muss angenommen werden, dass die 570- als auch die 810 keV-Strahlung mit dieser weicheren Strahlung koinzidieren.

### c) Die Konversionskoeffizienten.

Zur Berechnung der Konversionskoeffizienten der 201 keV-Strahlung wurde mit einem dünnwandigen Zählrohr in einer Anordnung bekannten Raumwinkels die Zahl der pro Zeiteinheit emittierten Konversionselektronen dieser Strahlung bestimmt und hierauf vom selben Präparat die Anzahl der 201 keV- $\gamma$ -Quanten durch



Absorption der γ-Strahlung in Blei, gemessen mit einem dünnwandigen Goldzählrohr.

a, 2838 |

eine Messung der  $\gamma$ -Strahlung unter Berücksichtigung ihrer Zusammensetzung sowie der Sensibilität des Zählrohres und des Raumwinkels festgestellt. Hieraus lässt sich der Konversionskoeffizient bestimmen zu 0,036  $\pm$  0,006.

Der Anschluss an diesen Konversionskoeffizienten ermöglicht es, ebenfalls diejenigen der 570 und 810 keV-Strahlung, deren Elektronenlinien im Linsenspektrographen aufgefunden werden konnten, durch Vergleich der unkonvertierten Strahlungen untereinander und der konvertierten Teile unter sich zu bestimmen. So ist die Konversionslinie der 570 keV-Strahlung 28mal schwächer als diejenige der 201 keV-Linie, aber die unkonvertierten Teile verhalten sich wie 0,4:0,7, woraus folgt, dass der Konversionskoeffizient 16mal kleiner ist, also  $(22\pm7)\cdot10^{-4}$  beträgt. In derselben Weise ergibt sich für den Konversionskoeffizienten der 810 keV-Strahlung ein Wert von  $(10\pm3)\cdot10^{-4}$ . Die Konversionslinie der schwachen 1017 keV-Strahlung entzog sich der Beobachtung.

# d) Das Röntgenstrahlungs-: y-Strahlungsverhältnis.

Die Feststellung der Zahl der Röntgenquanten im Verhältnis zu derjenigen der  $\gamma$ -Quanten geschah wie beim Tc<sup>94</sup> mit einem Präparat, das zur Weglenkung der Elektronen in ein Magnetfeld gebracht war (Fig. 16). Für diese Untersuchung musste der Anteil des 90<sup>d</sup>-Isomers des Tc<sup>97</sup> an der Röntgenstrahlung berücksichtigt werden.



Absorption der Röntgenstrahlung des 60*d*-Tc<sup>95</sup> und des 90*d*-Tc<sup>97</sup> in Aluminium.

Die Zahl seiner Konversionselektronen im Verhältnis zu denen der 60<sup>*d*</sup>-Periode und damit indirekt auch der  $\gamma$ -Strahlung ist aus den Absorptionsmessungen zu entnehmen. Die bekannten Daten für das Verhältnis der Konversion in K-, L- und M-Schale des 90<sup>*d*</sup>-Isomers sowie der Fluoreszenzausbeute ermöglichten es dann, die Anzahl der Röntgenquanten in Beziehung zu der  $\gamma$ -Strahlung zu berechnen. Dieser fremde Anteil an der Röntgenstrahlung betrug 17%, während die von der K-Konversion der 201 keV-Linie herstammende Röntgenstrahlung mit 2% beteiligt war. Da KALBFELL angegeben hatte, dass er den unkonvertierten Teil der 97 keV-Strahlung des Tc<sup>97</sup> durch Beobachtung der Photoelektronen im Heinrich Medicus, Peter Preiswerk und Paul Scherrer.

Spektrographen habe nachweisen können, musste wegen einer eventuellen notwendigen Korrektur abgeklärt werden, wie stark diese  $\gamma$ -Strahlung auftrete. Die Absorption der elektromagnetischen Strahlung mit Aluminium- und Kupferabsorbern zeigte aber gar keine Andeutung von einer 97 keV-Komponente.

Von der beobachteten Röntgenstrahlung sind nach dem obigen 81% durch den K-Einfang der  $60^{d}$ -Periode verursacht. Weil nun die Summe der 201 und 1017 keV-Quanten gleich ist der Anzahl der unter  $\gamma$ -Strahlemission erfolgenden Umwandlungen, diese aber kleiner ist als die Anzahl der aus der Röntgenstrahlintensität berechneten Elektroneneinfänge, ergibt sich, dass ein Teil der Umwandlungen ohne Emission von Kern- $\gamma$ -Quanten vollzogen wird, d. h. direkt in den Grundzustand führt. Ungefähr 30% der Zerfälle gehen so vor sich.

## e) Die Positronenemission.

Die Energie der  $\gamma$ -Strahlung zeigt, dass die Zerfallsenergie mindestens etwas grösser ist als 1 MeV, und da der direkte Übergang in den Grundzustand realisiert ist, muss auch die Emission von



Fig. 17.

Positronenspektrum des 60 d-Tc<sup>95</sup> nach Wilsonkammeraufnahmen.

Positronen stattfinden. Wilsonkammeraufnahmen, für deren Ausführung wir Dr. J. HALTER danken, zeigen tatsächlich ein Positronenspektrum mit einer Maximalenergie von  $400 \pm 50$  keV (Fig. 17). Bei der Bestimmung der obern Grenze des Spektrums wurde die Vielfachstreuung der Spuren berücksichtigt, indem die Deformation, die ein Fermi-Spektrum in der Wilsonkammer erleidet, nach der Theorie von WILLIAMS<sup>34</sup>) berechnet wurde. Aus den durch die Vernichtungsstrahlung erzeugten Koinzidenzen im Vergleich zu den durch die  $\gamma$ -Strahlung verursachten Einzelstössen in den Zählrohren konnte abgeschätzt werden, das ca. 0,2—0,6% der Zerfälle



Konversionslinien der 20 Stundenperiode des Tc<sup>95</sup> und des Tc<sup>96</sup> (Halbwertszeit 104 Stunden).

durch Positronenemission zustande kommen. Nach der Theorie von  $Møller^{29}$ ) beläuft sich der Quotient aus den Wahrscheinlichkeiten von K-Einfang und Positronenemission für diese Zerfallsenergie für erlaubte Übergänge auf rund 100, was mit unseren Beobachtungen im Einklang steht. Allerdings liegt hier ein nach der experimentellen Klassifikation einfach oder sogar zweifach verbotenes Spektrum vor, wie der  $f \cdot t$ -Wert von  $2,6 \cdot 10^7$  zeigt, doch ist mindestens die Grössenordnung dieses  $K:\beta^+$ -Verhältnisses auch bei solchen Übergängen noch dieselbe<sup>35</sup>).

# 3. Die 20<sup>h</sup>-Periode.

Das 20-Stunden-Tc<sup>95</sup>, das nach EGGEN und POOL<sup>6</sup>) ebenfalls gegenüber K-Einfang instabil ist, wurde nach dem Abklingen der einstündigen Perioden, d. h. ungefähr 12 Stunden nach Beendigung der Bestrahlung untersucht. Die zu diesem Zeitpunkt noch vorhandene Periode des Tc<sup>99\*</sup> von 6 Stunden, die durch die  $(p, \gamma)$ -Reaktion gebildet wird, besitzt eine die Messungen nicht störende Intensität.

# a) Die Konversionslinien.

Zur Untersuchung der Konversionslinien wurde ein elektrolytisch hergestelltes Präparat im Linsenspektrographen ausgemessen (Fig. 18). Eine sehr intensive Elektronenlinie tritt bei einer Energie von 742 keV auf, während ca. 20mal schwächere Linien bei 912 und 1051 keV gefunden wurden. Von diesen Linien scheint die mittlere ziemlich stark auch in der *L*-Schale konvertiert zu sein, was bei diesen doch schon recht hohen Energien etwas verwunderlich ist. Darum ist die Möglichkeit nicht von der Hand zu weisen, dass wir es hier mit einer weiteren  $\gamma$ -Linie, deren Energie um 16—17 keV höher liegt, zu tun haben. Den aufgezählten Linien entsprechen die Energien der  $\gamma$ -Strahlung von 762, 932, 1071 und event. 948 keV. Die erste dieser Linien entspricht der von EGGEN und Pool angegebenen. In einer Absorptionskurve der  $\gamma$ -Strahlung sind die schwachen härteren Komponenten neben der intensiven 762 keV-Strahlung nicht mehr spürbar.

# b) Andere Messungen.

Aus dem Verhältnis der Röntgenstrahlung zur  $\gamma$ -Strahlung (Fig. 19) kann geschlossen werden, dass der Grundzustand der Mo<sup>95</sup> nur über ein angeregtes Niveau erreicht werden kann, da die Zahl der Elektroneneinfänge gleich ist derjenigen der  $\gamma$ -Quanten.  $\gamma$ - $\gamma$ -Koinzidenzmessungen gaben innerhalb der Messgenauigkeit keinen Beweis für die Existenz einer Kaskade. Hierzu ist allerdings zu sagen, dass wegen der gleichzeitig auftretenden Koinzidenzen der 104<sup>h</sup>-Periode des Tc<sup>96</sup> eine sehr geringe Koinzidenzrate gar nicht feststellbar gewesen wäre.

Ein Augenmerk wurde auch auf die von EGGEN und POOL angegebene 200 keV-Elektronenstrahlung gerichtet. Ein  $\beta$ --Zerfall kommt nicht in Frage, da das Ru<sup>95</sup>, das dabei entstehen müsste, im Gegenteil sich ins 20<sup>*h*</sup>-Tc<sup>95</sup> umwandelt. Die Elektronen müssten folglich von einer inneren Konversion herstammen. Wir suchten im Spektrographen erfolglos nach einer solchen Linie, die, wenn sie auch nur einen Bruchteil der Stärke der 762 keV-Linie besessen hätte, uns nicht entgangen sein könnte. Wir vermuten daher, dass die von EGGEN und Pool beobachteten Elektronen durch Comptoneffekt erzeugt worden sind. Da in der Wilsonkammer keine Positronen beobachtet wurden, ist anzunehmen, dass eine Umwandlung durch Positronenemission an Stelle des K-Einfanges wenn überhaupt, dann nur in minimem Masse auftritt.



Zeitlicher Abfall der Röntgenstrahlungsintensität (oben) und der  $\gamma$ -Strahlungsintensität (unten).

#### c) Das Termschema.

Im weitaus überwiegenden Teil der Zerfälle führt der Elektroneneinfang nach einem 762 keV über dem Grundzustand des Molybdänkerns liegenden Niveau. Würde die Emission der drei  $\gamma$ -Linien von 1071, 932 und 762 keV ähnlich wie beim Tc<sup>96</sup> in Dreierkaskade erfolgen, so hätten Positronen beobachtet werden müssen, da dann die Zerfallsenergie genügend gross wäre, um Positronenemission ins 762 keV-Niveau zu gestatten. Auch die Annahme einer DoppelHeinrich Medicus, Peter Preiswerk und Paul Scherrer.

kaskade, gebildet aus den 932 und 762 keV-, resp. 1071 und 762 keV-Übergängen, ist unwahrscheinlich. Die Energiedifferenz der beiden Ausgangszustände des Tc<sup>95</sup> (20 Stunden und 60 Tage) wäre dann so gross, dass die partielle Lebensdauer des obern isomeren Niveaus gegenüber  $\gamma$ -Emission beobachtbar würde. Es konnten aber weder Konversionslinien gefunden werden, die diesem isomeren Übergang zuzuschreiben wären, noch treten gleiche Niveaux in den beiden Perioden auf, was der Fall sein müsste, wenn dieser Übergang in merklichem Masse realisiert wäre. Es ist daher plausibel, anzunehmen, dass alle drei  $\gamma$ -Übergänge direkt in den Grundzustand führen.



Termschema des Tc<sup>95</sup>.

Eines dieser Niveaux im Mo<sup>95</sup>, die der Zerfall des 20<sup>*h*</sup>-Tc<sup>95</sup> aufzeigt, wird auch bei der  $\beta^-$ -Umwandlung des Isobars Nb<sup>95</sup> angeregt. So haben HUDGENS und LYON<sup>36</sup>) durch spektrographische Messungen Konversionselektronen einer  $\gamma$ -Strahlung von 0,758  $\pm$  0,020 MeV festgestellt und gleichzeitig auch ihr Intensitätsverhältnis zu den  $\beta$ -Teilchen des Nb<sup>95</sup>-Mo<sup>95</sup>-Überganges bestimmt. Da dort praktisch alle  $\beta$ -Übergänge über dieses angeregte Niveau führen, ist dieses Verhältnis gleich dem Konversionskoeffizienten der Linie. Die beiden Forscher fanden hierfür 2,4·10<sup>-3</sup>.

Fig. 20 gibt das Zerfallsschema des 20 Stunden- und des 60 Tage-Tc<sup>95</sup> wieder. Spins und Paritäten der einzelnen Niveaux sind derart angenommen, dass die theoretische Wahrscheinlichkeit des Auftretens von Übergängen in Übereinstimmung mit den experimentellen Daten bleibt. Wie am Schluss der Arbeit ausgeführt wird, besteht ein gewisser Anhaltspunkt dafür, dass der Spin des Mo<sup>95</sup> im Grundzustand 5/2 beträgt.

332

#### VI. Die Umwandlung des Te<sup>96</sup>.

#### 1. Die Röntgenstrahlung des Tc<sup>96</sup>.

Die 10 Tage nach der Bestrahlung des Molybdäns mit Protonen von 7 MeV Energie völlig dominierende und darum einfach zu untersuchende Periode ist diejenige des Tc<sup>96</sup>, dessen Halbwertszeit wir zu 104  $\pm$  1 Stunden (= 4,35 Tage) bestimmten. Schon Ewing, PERRY und McCREARY<sup>15</sup>) haben diese Periode beobachtet und ver-



mutet, das die Umwandlung durch K-Einfang vor sich gehe. Durch die Ausmessung der Augerelektronenlinien im  $\beta$ -Spektrometer, die als Folge des K-Einfangs in ungefähr einem Drittel der Umwandlungen vom Molybdänkern ausgesandt werden, konnten wir verifizieren, dass der Zerfall durch Elektroneneinfang erfolgt, während EDWARDS und POOL<sup>8</sup>) diesen Nachweis durch Beobachtung der K-Röntgenstrahlung im Kristallspektrographen leisteten. Den unkonvertierten Teil der Röntgenstrahlung stellten wir durch Absorptionsmessungen in Aluminium in der schon beschriebenen Anordnung im Magnetfeld fest.

### 2. Konversionselektronen und $\gamma$ -Strahlung.

Ausschliessliche Absorptionsmessungen geben kein korrektes Bild über die emittierte  $\gamma$ -Strahlung. Der Verlauf der Absorption hinter Blei verführt nämlich dazu, die Existenz einer homogenen Strahlung von rund 0,8 MeV anzunehmen, da sich bis zu 5 cm Absorberdicke keine Abweichung von einer Geraden zeigt, die auf das Vorhandensein weiterer Komponenten schliessen liesse (Fig. 21). Doch schon eine Messung der Reichweite der in Aluminium ausgelösten Comptonelektronen in der Bothe'schen Anordnung gibt eine härtere schwache Komponente von 1,1 MeV zu erkennen (Fig. 22).



Konversionselektronenspektrum des Tc.

Dieselben Präparate, mit denen schon die Konversionslinien der 20 Stunden-Periode ausgemessen wurden, fanden auch für die Aufklärung des  $\gamma$ -Spektrums des Tc<sup>96</sup> Verwendung. Die  $\gamma$ -Strahlung erwies sich als sehr komplex, indem im Bereich von 750 bis 1150 keV Konversionselektronen von vier  $\gamma$ -Übergängen zu finden waren<sup>37</sup>). Drei davon sind von grössenordnungsmässig gleicher Intensität und eng benachbart, während die vierte Linie bedeutend schwächer ist Ausserdem ist noch eine Konversionslinie geringer Energie vorhanden (Fig. 23). Uber Energien und Intensitätsverhältnisse aller aufgefundenen Konversionslinien gibt Tabelle 6 Auskunft.

Energie <i>E<sub>e</sub>-</i> MeV	Intensität	Elektronen- schale	Energie $E_{\gamma}$ der $\gamma$ -Strahlung (MeV)
0,0150		Auger	
0,0168		Auger	
0,292	0,217	ĸ	0,312
0,308	0,034	L	0,312
0,751	1,23	K + L	0,771
0,786	0,91	K + L	0,806
0,822	1,00	K + L	0,842
1,099	0,10	$\mathbf{K} + \mathbf{L}$	1,119

# **Tabelle 6.** Elektronenlinien des Tc<sup>96</sup>.

Grosse Sorgfalt wurde darauf verwendet, die Energien der Linien von 312, 806 und 1119 keV mit möglichster Präzision zu bestimmen, da die Vermutung nahe lag, dass die letztgenannten Linien einem direkten Übergang zwischen zwei Niveaux, der teilweise auch unter Emission der beiden ersten Linien erfolgen könne, entspreche. Während die absoluten Energiewerte höchstens mit systematischen Fehlern in der Grössenordnung von 1% in der H $\varrho$ -Skala behaftet sind, sind die relativen Fehler der Linien untereinander viel geringer. Unsere Messungen zeigen, dass die Linie mit 312 keV Energie sehr gut als Differenzlinie angesprochen werden könnte.

Für die Bestimmung des unkonvertierten Teils der  $\gamma$ -Strahlung wurde zunächst im  $\beta$ -Spektrometer das Spektrum der Comptonelektronen ausgemessen. Es konnte in zwei Komponenten aufgelöst werden, von denen die energiereichere zur 1,1 MeV-Strahlung gehörte, während die andere die Gruppe der 0,8 MeV-y-Strahlung umfasste, die weiter nicht zerlegt werden konnte. Die 0,3 MeV-Strahlung machte sich im Comptonspektrum nicht bemerkbar. Die Energien von 1,1 und 0,8 MeV liegen nicht weit auseinander, so dass hier ohne wesentlichen Fehler das für derartige Messungen von K. SIEGBAHN<sup>38</sup>) bestimmte Sensibilitätsverhältnis für diese Strahlung übernommen werden durfte. Das so bestimmte Verhältnis der Anzahl der y-Quanten der 0,8 MeV-Gruppe zu den 1,1 MeV-Quanten beträgt 15  $\pm$  4. Eine gewisse Kontrolle für die richtige Grössenordnung lieferten auch die Zerlegungen der Absorptionskurven der y-Strahlung hinter Blei und der Sekundärelektronen in Aluminium nach der Bothe'schen Anordnung.

Heinrich Medicus, Peter Preiswerk und Paul Scherrer.

Zur Aufklärung der innerhalb der 0,8 MeV-Gruppe bestehenden Intensitätsverhältnisse der  $\gamma$ -Komponenten wurden die aus einer 0,017 mm dicken Bleifolie ausgelösten Photoelektronen im Spektrometer ausgemessen (Fig. 24). Die drei  $\gamma$ -Strahlen erzeugten genügend getrennte Spitzen, um eine Analyse zu gestatten. Es ergab sich hier ein ähnliches Bild wie bei den Konversionslinien: Die mittlere Linie war in ungefähr demselben Masse schwächer wie die beiden andern Linien, deren Intensität ungefähr gleich ist. Da sich in der Absorptionskurve keinerlei Andeutung einer unkonvertierten  $\gamma$ -Strahlung von 312 keV Energie gezeigt hatte, wurde beim Ausmessen des Photoelektronenspektrums besonders darauf geachtet,



Photo- und Comptonelektronenspektrum des Tc<sup>96</sup>, undividierte Form.

ob sich etwa mit dieser Methode eine unkonvertierte Strahlung feststellen lasse. Die Photoelektronenlinie müsste in einem Energiebereich, der für eine Beobachtung besonders günstig ist, liegen; die Absorption der  $\gamma$ -Strahlung in der umgebenden Hülse ist nicht mehr so beträchtlich wie bei kleineren Energien, hingegen ist die Ausbeute an Photoelektronen immer noch sehr gross. Wir konnten auch hier keine Andeutung einer solchen unkonvertierten Strahlung entdecken, was dafür spricht, dass die Zahl ihrer unkonvertierten Quanten im Vergleich zu denjenigen der andern Energien recht gering sein muss.

# 3. Konversionskoeffizienten.

Die Kenntnis des Raumwinkels und des Auflösungsvermögens des Linsenspektrographen erlaubten es, die absolute Anzahl der Konversionselektronen der einzelnen Linien zu bestimmen. Ausserhalb des Spektrographen wurde mit einem  $\gamma$ -Zählrohr in definierter Anordnung die Intensität der  $\gamma$ -Strahlung gemessen. Auf diese Weise gelang es, unter Berücksichtigung des bekannten Stärkeverhältnisses der  $\gamma$ -Strahlung, die Konversionskoeffizienten  $\alpha = N$ Elektronen/NQuanten der harten Komponenten zu bestimmen. Der mittlere Konversionskoeffizient für die 0,8 MeV-Gruppe beträgt  $\alpha_{0,8 \text{ MeV}} = (5.9 \pm 1.0) \cdot 10^{-4}$ , für die 1,119 MeV-Linie ergibt sich  $\alpha_{1,119 \text{ MeV}} = (2.7 \pm 0.8) \cdot 10^{-4}$ .

Da die Intensitätsverhältnisse innerhalb der 0,8 MeV-Gruppe im konvertierten und im unkonvertierten Teil ähnlich sind, darf daraus geschlossen werden, dass die Multipolordnung der emittierten Strahlung bei allen drei Übergängen dieselbe ist. In Tabelle 7 sind die

E MoV	Elektris	che 2 <sup>1</sup> -Polst	rahlung	Magne <sup>-</sup> 2 <sup>1</sup> -Polstr	tische ahlung	Experimentell
MIG V	l = 1	l=2 .	l=3	l=1	l=2	
0,312	5,0.10-3	$2,25 \cdot 10^{-2}$	8,1 .10-2	$1,33 \cdot 10^{-2}$	5,5 $\cdot 10^{-2}$	
0,312	K:L7,9	6,4	5,6	7,5	7,3	$6,4\pm1,0$
0,771	$5,8 \cdot 10^{-4}$	$1,49 \cdot 10^{-3}$	3,4 .10-3	$1,51 \cdot 10^{-3}$	4,0 ·10 <sup>-3</sup>	)
0,806	$5,2 \cdot 10^{-4}$	$1,32 \cdot 10^{-3}$	3,0 ·10 <sup>-3</sup>	$1,37 \cdot 10^{-3}$	3,5 ·10 <sup>-3</sup>	$(5,9\pm1,0)\cdot10^{-4}$
0,842	$4,7 \cdot 10^{-4}$	1,18.10-3	2,6 ·10 <sup>-3</sup>	$1,24 \cdot 10^{-3}$	3,2 ·10 <sup>-3</sup>	)
1,119	$2,7 \cdot 10^{-4}$	6,0 ·10 <sup>-4</sup>	$1,22 \cdot 10^{-3}$	6,6 ·10 <sup>-4</sup>	$1,52 \cdot 10^{-3}$	$(2,7 \pm 0,7) \cdot 10^{-4}$

Tabelle 7.Konversionskoeffizienten des Tc%.

theoretischen Konversionskoeffizienten auf Grund der Tabellen von ROSE, GOERTZEL, SPINRAD, HARR und STRONG<sup>39</sup>) verzeichnet. Da bis jetzt nur die Werte für die K-Schale herausgegeben sind, aber nur der totale Konversionskoeffizient von uns gemessen werden konnte, da das Auflösungsvermögen des Apparates bei diesen hohen Energien eine Trennung in K- und L-Konversion nicht mehr gestattete, ist zu den Rose'schen Tabellenwerten für die hohen Energien ungefähr ein Achtel zugeschlagen, um der Konversion in den andern Schalen Rechnung zu tragen. Für die entsprechenden Korrekturen bei der 312 keV- $\gamma$ -Strahlung wurden die Rechnungen von HEBB und NELSON<sup>26</sup>) benützt. Die experimentell bestimmten Konversionskoeffizienten sind ebenfalls aufgeführt. Für die 0,312 MeV-Strahlung, deren unkonvertierter Teil nicht beobachtet werden konnte, von der wir aber das K:L-Konversionsverhältnis bestimmten konnten, sind auch diese Angaben enthalten.

Die Konversionskoeffizienten der  $\gamma$ -Linien von ca. 0,8 MeV und von 1,119 MeV Energie entsprechen demnach elektrischen Dipolübergängen. Aus dem K:L-Konversionsverhältnis der 0,312 MeV-  $\gamma$ -Strahlung lässt sich hingegen nicht entscheiden, ob elektrische Quadrupol- eventuell mit Beimischung magnetischer Dipolstrahlung oder aber eine Mischung von elektrischer Oktopol- mit magnetischer Quadrupolstrahlung vorliegt.

Mit den theoretischen Werten für die entsprechenden Multipolstrahlungen kann nun aus der Stärke der Konversionslinien auf die relativen Intensitäten der  $\gamma$ -Strahlung geschlossen werden. Auf diese Weise erhält man  $I_{0,312 \text{ MeV}}$ :  $I_{0,771 \text{ MeV}}$ :  $I_{0,806 \text{ MeV}}$ :  $I_{0,842 \text{ MeV}}$ :  $I_{1,119 \text{ MeV}} = 0,0052:100:0,82:1,00:0,17.$ 

Für die 0,312 MeV-Komponente wurde hier elektrische Quadrupolstrahlung angenommen.

Es zeigt sich also, dass die Summe der 0,806 MeV- und der 1,119 MeV- $\gamma$ -Strahlung ziemlich genau der Intensität jedes der beiden andern  $\gamma$ -Strahlen von 0,8 MeV entspricht.

# 4. $\gamma$ - $\gamma$ -Koinzidenzen.

In einer geeichten Anordnung zur Messung von  $\gamma$ - $\gamma$ -Koinzidenzen wurde die Koinzidenzrate der  $\gamma$ -Strahlung mit Zählrohren mit Wismut- und mit Messingkathode bestimmt. Die sehr hohe experimentelle Koinzidenzrate stimmt genau überein mit der berechneten für den Fall, dass die  $\gamma$ -Strahlung in Dreierkaskaden ausgesandt wird.

# 5. Das Verhältnis der Röntgenstrahlung zur $\gamma$ -Strahlung.

Die Bestimmung der Zahl der K-Einfänge in bezug auf die Zahl der  $\gamma$ -Kaskaden nahmen wir in gleicher Weise wie bei den andern Perioden vor (Fig. 19). Es zeigte sich dabei, dass die Elektroneneinfangsprozesse gleich häufig sind wie die Kaskaden; es kommen demnach keine direkten Übergänge in den Grundzustand vor. Damit ist auch im Einklang, dass auf Wilsonkammeraufnahmen keine Positronenspuren gefunden wurden, was ja sonst der Fall sein müsste, da die Energiedifferenz zwischen dem Tc-Kern und dem Grundzustand des Molybdäns eine Positronenemission bei weitem zuliesse.

# 6. Zur Frage eines $\beta$ -Kontinuums.

Sowohl EWING als auch EDWARDS und POOL berichten über Elektronen einer Energie von rund 0,6 MeV. Da dies aber gerade der Maximalenergie der von einer 0,8 MeV- $\gamma$ -Strahlung ausgelösten Comptonelektronen entspricht, ist wohl anzunehmen, dass es sich um die durch die sehr intensive  $\gamma$ -Strahlung ausgelösten Comptonelektronen handelt. Bei unsern Messungen im Linsenspektrographen

338

#### Radioaktive Isotope des Technetiums.

suchten wir erfolglos nach Konversionselektronen in diesem Bereich; wir fanden jedoch ein schwaches Kontinuum, das sich bis zu ungefähr 0,8 MeV erstreckte. Obwohl die Möglichkeit eines dualen Zerfalles nicht von der Hand zu weisen ist, da ein stabiles Rutheniumisotop der Massenzahl 96 existiert, konnten wir doch bei Versuchen mit verschieden dicken Präparaten feststellen, dass die Intensität dieses Kontinuums mit steigender Präparatdicke zunahm, so dass wir vermuten, dass dieses Kontinuum wenigstens zum Teil durch Rückstreuung von Elektronen und durch Comptoneffekt zustande kommt.

### 7. Das Termschema.

Mit den gewonnenen Daten über das Tc<sup>96</sup> kann nun daran gegangen werden, das in Fig. 25 wiedergegebene Termschema aufzustellen. Die Reihenfolge der beiden untersten Kaskadenpartner



Termschema des Tc<sup>96</sup>.

ist hierin willkürlich angenommen. Weil die Energiedifferenz der 1,119 MeV- und 0,806 MeV-Komponenten gerade gleich der Energie der 0,312 MeV-Strahlung ist, liegt die Annahme nahe, dass die letztere als Differenzlinie zwischen dem obersten und dem zweitobersten Niveau anzusprechen ist. Da aber die Paritäten dieser beiden Niveaux durch die von ihnen ausgehende elektrische Dipolstrahlung festgelegt sind, müsste diese 0,312 MeV-Strahlung elektrischen Quadrupolcharakter besitzen. Eine Abschätzung der Zer fallskonstanten von  $\gamma$ -Übergängen nach AXEL und DANCOFF<sup>27</sup>) ergibt aber, dass diese  $\gamma$ -Linie wegen der Konkurrenz durch den 1,119-MeV-Übergang rund 10<sup>5</sup>mal schwächer sein müsste als sie tatsächlich ist. Setzt man sich allerdings über die Paritätsregeln hinweg, aus Gründen, die K. SIEGBAHN und GHOSH<sup>40</sup>) in einem ähnlich gearteten Fall anführen, dann könnte die 0,312 MeV-Linie einem Dipolübergang entsprechen, und das Intensitätsverhältnis der beiden konkurrierenden Linien wäre in sehr guter Übereinstimmung mit dem theoretischen.

In der Wilsonkammer wurden keine Positronen beobachtet. Das schliesst aber nicht aus, dass bei den nach den GAMOW-TELLER'schen Auswahlregeln einfach verbotenen Übergängen auf die 1,613 MeV, bzw. 1,925 MeV über dem Grundzustand liegenden Niveaux neben dem K-Einfang in geringem Masse auch Positronenemission stattfindet. Die Übergänge vom Ausgangszustand des Tc nach den beiden obersten Niveaux des Mo sind entsprechend der Halbwertszeit und der maximal möglichen Energie erlaubte Übergänge.

#### VII. Das 90<sup>d</sup>-Isomer des Tc<sup>97</sup>.

HELMHOLZ<sup>31</sup>) hat mit einem Halbkreisspektrographen mit Photoplatte die Energie und das Konversionsverhältnis in K- und L-Schale des Isomers des Tc<sup>97</sup>, das nach CACCIAPUOTI und SEGRÈ<sup>30</sup>) eine Halbwertszeit von 90 Tagen besitzt, mit 97 keV, bzw. 2 bestimmt. Im Verlaufe unserer Messungen nahmen wir die Gelegenheit wahr, auch dieses Isomer in unserm Spektrographen zu untersuchen. Für die Energie der  $\gamma$ -Strahlung erhielten wir 95,8 ±0,6 keV und für das Konversionsverhältnis  $N_K: N_{L+M}$  1,6 ± 0,2. Bei Annahme einer Mischung aus magnetischer 2<sup>4</sup>-Pol- und elektrischer 2<sup>5</sup>-Polstrahlung führt die Lebensdauerformel von AXEL und DANcoFF<sup>27</sup>) auf eine Halbwertszeit von ca. 20 Jahren, diejenige von BERTHELOT<sup>28</sup>) auf ungefähr zwei Jahre.

## VIII. Über Tc<sup>92</sup>, Tc<sup>93</sup>, Tc<sup>99</sup> und Tc<sup>101</sup>.

Nachdem nun die Termschemata einer Reihe von Isotopen des Elements 43 feststehen, darf darangegangen werden, Vergleiche zu ziehen und Ähnlichkeiten aufzudecken. In Fig. 26 sind zur Erleichterung der Übersicht nochmals die Zerfallsschemata aufgeführt. Beigefügt ist noch dasjenige des Tc<sup>99</sup>, des Tochterprodukts des Mo<sup>99</sup>, dessen Zerfall in einer separaten Arbeit beschrieben wurde<sup>41</sup>). Weiter sind mittels der Angaben von KUNDU und Pool<sup>4</sup>) über Intensitätsverhältnisse und Energien der  $\beta$ -,  $\gamma$ - und Röntgenstrah-

#### Radioaktive Isotope des Technetiums.

lung mutmassliche Termschemata des Tc<sup>92</sup> und Tc<sup>93</sup> aufgestellt worden. Die Daten über die Umwandlung des Tc<sup>92</sup> reichen jedoch nicht aus, um in einem widerspruchsfreien Termschema zusammengefasst zu werden. Vom Tc<sup>92</sup> ist aber anzunehmen, dass der Grossteil der Zerfälle direkt in den Grundzustand des Mo führt, da die Zahl der Mo-K-Röntgenquanten mehrfach grösser ist als diejenige der  $\gamma$ -Quanten und Elektronen zusammen. Diese K-Quanten sind



#### Fig. 26.

#### Übersicht über die Termschemata des Tc.

Tc<sup>92</sup> und Tc<sup>93</sup> nach KUNDU und POOL, Mo<sup>99</sup>-Tc<sup>99</sup> nach MEDICUS, MAEDER und SCHNEIDER, Mo<sup>101</sup>-Tc<sup>101</sup> nach MAURER und RAMM. Tc<sup>94</sup>, Tc<sup>95</sup>, Tc<sup>96</sup>, siehe S. 320, 332, 339.

anzusehen als Folge des K-Einfanges. Eigenartig bei dieser Umwandlung ist allerdings, dass KUNDU und POOL keine Positronen beobachtet haben, wo doch die Zerfallsenergie eine Positronenemission zulassen sollte. Beim Tc<sup>93</sup> konstatierten die genannten Forscher, dass K-Quanten und Positronen zusammen ungefähr gleich häufig sind wie die  $\gamma$ -Quanten von 2 MeV Energie. Deshalb nehmen wir an, dass die Emission in Kaskade erfolgt. Vom Tc<sup>93</sup> mit 4,5 Min. Halbwertszeit sind zu wenig Daten bekannt, um auch nur versuchsweise ein Termschema aufstellen zu können. Das Schema für die Umwandlung Mo<sup>101</sup>—Tc<sup>101</sup>—Ru<sup>101</sup> beruht auf Messungen von MAURER und RAMM<sup>10</sup>). Auch hier sind alle Energien nur aus Absorptionsmessungen bestimmt, so dass das Schema möglicherweise unvollständig ist.

#### IX. Vergleichende Betrachtungen der Termschemata.

Beim Vergleich der Umwandlungen fällt zunächst die Menge der Isomere auf: Alle Isotope ungerader Massenzahl von 93 bis 99 besitzen solche, dazu kommt noch das 51,5 Min.-Isomer mit unbekannter Massenzahl. Auch hier bestätigt sich, dass das Auftreten isomerer Zustände bei einem Element sehr häufig nicht auf nur ein Isotop beschränkt ist. Das Schalenmodell der Kerne macht dieses kumulierte Auftreten der Isomerie in gewissen Bereichen der Protonen- und Neutronenzahlen plausibel. Die Isotope des Tc fallen mit Z = 43 nach dem von M. GOEPPERT-MAYER<sup>42</sup>) sowie von HAXEL, JENSEN und SUESS<sup>43</sup>) vorgeschlagenen Modell (Tabelle 8) in das Gebiet, in welchem der Kernspin den Wert  $\frac{9}{2}$  annehmen kann.

#### Tabelle 8.

Terme des Schalenmodells für Protonen- und Neutronenzahlen 20 < n < 100 nach Suess, HAXEL und JENSEN.

Oszillator- quantenzahl	Bahn- drall <i>l</i>	Gesamt- drall j	l <sub>j</sub> -Sym- bol	Multipli- zität	Magic Numbers
2 er <sup>21</sup>					e P
• #	•	·	•	•	
1 1	•	•	•	٠	
· 4	3	$\dot{7/2}$	f <sub>7/2</sub>	8	28
	1	$5/2 \ 3/2 \ 1/2$	f <sub>5/2</sub> P <sub>3/2</sub> P <sub>1/2</sub>	$egin{array}{c} 6 \\ 4 \\ 2 \end{array}  ight brace = 22$	
5	4	9/2	g <sub>9/2</sub>	10	50
	2	$7/2 \\ 5/2 \\ 3/2$	$g_{7/2} \ d_{5/2} \ d_{3/2}$	$egin{pmatrix} 8 \\ 6 \\ 4 \end{pmatrix}_{=32}$	N
5	0	1/2	81/2	2	
. 6	5	11/2	$h_{11/2}$	12 <sup>)</sup>	82
, n	3	9/2 7/2	$h_{9/2}$ $f_{7/2}$	10 8	2) 12
18		•	•		
•	• 	• •	•	6 <b>.</b> .	a., a

Im Falle einer ungeraden Massenzahl, und folglich hier einer geraden Neutronenzahl, ist das letzte unpaarige Proton für den Gesamtspin des Kernes massgebend. Dieses 43. Proton befindet sich in der Unterschale, die das 41. bis 50. Proton aufnehmen kann und darum nicht voll besetzt ist. Ihr entspricht ein Bahndrall von 4 und ein Gesamtdrall von  ${}^{9}/_{2}$ . Der isomere Zustand wäre dann so zu verstehen, dass sich in dieser Schale eine gerade Anzahl von Protonen befindet, dafür aber in der vorangehenden Unterschale ein unpaariges Proton mit dem Bahndrall 1 und dem Gesamtdrall  ${}^{1}/_{2}$  sitzt. Die Energiedifferenz dieser beiden Zustände ist vermutlich nicht gross, da der Platzwechsel in benachbarten Unterschalen der selben Hauptschale stattfindet. Übergänge zwischen den beiden isomeren Zuständen sind bisher nur beim Tc<sup>93</sup>, Tc<sup>99</sup> und dem 51,5 Min.-Tc beobachtet worden. Eine so weitgehende Ähnlichkeit der isomeren Zustände in bezug auf ihre Energie und Halbwertszeit, wie sie in Einzelfällen, z. B. den Silberisomeren Ag<sup>107</sup> und Ag<sup>109 44</sup>) auftritt, ist hier nicht aufzuweisen.

Bei der Umwandlung des Tc werden im Molybdän bei mehreren Isotopen Energieniveaux angeregt, die ungefähr 0,8 MeV über dem Grundzustand liegen. Beim 20 Stunden-Tc<sup>95</sup> führen fast alle Übergänge über ein solches Niveau von 0,762 MeV, während beim 60 Tage-Isomer ca. 40% der Zerfälle ein Niveau erreichen, das nur 9 keV höher liegt als jenes, nämlich bei 0,771 MeV. Auch das Tc<sup>96</sup> besitzt ein entsprechendes Niveau; leider kann aber dort nicht entschieden werden, ob es 0,771 MeV oder 0,842 MeV über dem Grundzustand liegt, da die entsprechenden  $\gamma$ -Linien einer Kaskade angehören, in der die Reihenfolge dieser beiden Partner nicht festzulegen ist. Auch im Mo<sup>94</sup> liegt ein Niveau 0,873 MeV über dem Grundzustand, während beim  $\beta$ -Zerfall des Mo<sup>99</sup> im Tc<sup>99</sup> ein Niveau 0,869 MeV über dem Grundzustand angeregt wird.

Die Ausstrahlung von  $\gamma$ -Quanten einer Energie von rund 0,8 MeV ist überhaupt bemerkenswert: Im Zerfall des Tc<sup>94</sup> tritt eines auf, ebenfalls bei denjenigen der beiden Isomere des Tc<sup>95</sup>. Bei der Umwandlung des Tc<sup>96</sup> sind es sogar drei Quanten, deren Energien sich um 35—36 keV unterscheiden. Ihre Emission geht aber nicht in der Reihenfolge steigender oder fallender Energie vor sich, denn es steht fest, dass das Quant mit der mittleren Energie als erstes emittiert wird. Schliesslich ist ein 726 keV-Quant, das bei der Umwandlung des Mo<sup>99</sup> vom Tc-Kern emittiert wird, zu erwähnen.

Auch in der Anordnung der übrigen Niveaux sind gewisse gemeinsame Züge zu konstatieren. Vergleicht man z. B. die Termschemata des Tc<sup>94</sup> und des Tc<sup>96</sup>, so fällt auf, dass ausser den schon erwähnten 0,8 MeV-Niveaux bei rund 2,75 MeV je ein Niveau existiert. Das 1,6 MeV-Niveau hat im Mo<sup>94</sup> kein Pendant, hingegen darf bei dem andern Isotop mit geradzahligem Atomgewicht, dem Mo<sup>92</sup>, das 1,5 MeV-Niveau als solches angesprochen werden. Wir halten es für wertvoll auf diese Regelmässigkeiten hinzuweisen, auch wenn einstweilen ihre Erklärung noch nicht möglich ist.

Zur Interpretation von  $\beta$ -Übergängen scheint sich die Heranziehung des Schalenmodells als sehr fruchtbar zu erweisen. NORD-HEIM<sup>45</sup>) hat darauf aufmerksam gemacht, dass bei erlaubten  $\beta$ -Übergängen von Kernen, deren Z < 50, jedoch deren N > 50 ist, in der Regel der Grundzustand des Folgekerns nicht direkt erreicht wird, sondern erst unter Emission eines y-Quantes. Nach dem Schalenmodell ist dies leicht einzusehen, da das letzte Proton und das letzte Neutron sich in verschiedenen Schalen befinden. Im Beispiel des Tc<sup>101</sup> befindet sich das letzte Neutron, d. h. das 58. in der Hauptschale, die das 51. bis 82. Neutron aufnehmen kann. Die Umwandlung des Neutrons in ein Proton geschieht noch in dieser Schale. Hierauf springt dieses in die noch nicht mit 50 Protonen aufgefüllte Schale unter Emission eines y-Quants. Tatsächlich haben MAURER und RAMM<sup>10</sup>) einen γ-Übergang gefunden, der dem  $\beta$ -Zerfall des Tc<sup>101</sup> folgt. Dass beim K-Einfang des Tc<sup>92</sup> der Grundzustand des Mo direkt erreicht werden kann, ist verständlich. da das 43. Proton, das sich in das 50. Neutron umwandelt, in der analogen Unterschale Platz findet. Von der Massenzahl 93 an kommen keine erlaubten Übergänge in den Grundzustand mehr vor. Während für die  $\beta$ -Emission eine Begründung leicht gegeben werden konnte, ist im Falle der Positronenemission diese Interpretation schwieriger.

Beim Tc<sup>95</sup> wurde gezeigt, dass ein erlaubter Übergang in den Grundzustand nicht realisiert ist. Die Proton-Neutron-Umwandlung muss mit einem Platzwechsel des Nukleons von der 50er- zur 82er-Schale verbunden sein, da der noch nicht aufgefüllten Protonenschale eine voll besetzte Neutronenschale entspricht. Falls der Grundzustand des Mo<sup>95</sup>, wie eigentlich nach dem Schema zu erwarten ist, ein  $g_{7/2}$ -Term wäre, so würde der direkte erlaubte Übergang in den Grundzustand,  $g_{9/2} \rightarrow g_{7/2}$ , in Übereinstimmung mit den Gamow-Teller'schen Auswahlregeln für den  $\beta$ -Zerfall zustande kommen. Da dieser aber nicht beobachtet wird, ist anzunehmen, dass dieser  $g_{7/2}$ -Zustand nicht der tiefste in der mit 51 Neutronen beginnenden Hauptschale ist. Dafür könnte auch der experimentell mit 1/2 bestimmte Spin von Mo<sup>95</sup> sprechen, der einem  $s_{1/2}$ -Zustand zuzuordnen wäre. Dieser Wert wird sowohl von FEENBERG und HAMMACK<sup>46</sup>) als auch von M. GOEPPERT-Mayer<sup>42</sup>) angezweifelt, da durch ihn Schwierigkeiten in der Interpretation der Nb<sup>95</sup>-Mo<sup>95</sup>-Umwandlung, die nicht in Zusammenhang mit dem Schalenmodell stehen, auftreten müssten. Ordnet man aber dem Mo mit seinen 53 Neutronen versuchsweise denselben Spin zu, wie

 $\mathbf{344}$ 

ihn das I<sup>127</sup> mit 53 Protonen besitzt, nämlich  $5/2^*$ ), und nimmt als Grundzustand  $d_{5/2}$  an, so fallen diese Schwierigkeiten fort. SUESS, HAXEL und JENSEN<sup>43</sup>) betonen, dass innerhalb der Hauptschalen, solange sie nicht aufgefüllt sind, ähnlich wie bei der Atomhülle, die Reihenfolge der Terme sich nicht streng an das Schema zu halten braucht, so dass hier keine besondere Ausnahme vorläge.

Über die u-u-Kerne des Tc und ihre Übergänge in g-g-Kerne des Mo lässt sich einstweilen mittels des Schalenmodells noch nichts Konkretes aussagen, doch darf man hoffen, dass mit der Entwicklung dieses Modells bald auch Umwandlungen von Kernen gerader Massenzahl interpretiert werden können.

Zum Schlusse möchten wir den Herren A. MUKERJI, M. Sc. und dipl. phys. G. DE SAUSSURE, die uns bei einem Teil der Messungen mithalfen, sowie dem Aluminiumfonds Neuhausen, der uns finanzielle Mittel zur Verfügung stellte, unsern besten Dank aussprechen.

#### Literaturverzeichnis.

- <sup>1</sup>) H. JENSEN, Naturwissensch. 20, 381 (1938).
- <sup>2</sup>) W. NODDACK, I. TACKE und O. BERG, Ber. Berl. Akad. 1925, 400.
- <sup>3</sup>) C. PERRIER und E. SEGRÈ, Nature 159, 24 (1947).
- <sup>4</sup>) D. N. KUNDU und M. L. POOL, Phys. Rev. 74, 1775 (1948).
- <sup>5</sup>) E. E. MOTTA und G. E. BOYD, Phys. Rev. 74, 220 (1948).
- <sup>6</sup>) D. T. EGGEN und M. L. POOL, Phys. Rev. 74, 57, 1248 (1948).
- <sup>7</sup>) E. E. MOTTA und G. E. BOYD, Phys. Rev. 74, 344 (1948).
- 8) J. E. EDWARDS und M. L. POOL, Phys. Rev. 72, 384 (1947).
- <sup>9</sup>) W. H. SULLIVAN, N. R. SLEIGHT und E. M. GLADROW, Phys. Rev. 70, 778 (1946).
- <sup>10</sup>) W. MAURER und W. RAMM, Z. Physik 119, 334 (1942).
- <sup>11</sup>) O. HUBER, P. MARMIER, H. MEDICUS, P. PREISWERK und R. STEFFEN, Phys. Rev. 73, 1208 (1948).
- <sup>12</sup>) E. E. MOTTA und G. E. BOYD, Rev. 73, 1470 (1948).
- <sup>13</sup>) P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER und R. STEFFEN, Helv. Phys. Acta 19, 418 (1946).
- <sup>14</sup>) E. JACOBI, Helv. Chimica Acta 31, 2118 (1948).
- <sup>15</sup>) D. EWING, T. PERRY und R. L. McCREARY, Phys. Rev. 55, 1136 (1939).
- <sup>16</sup>) O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK und R. STEFFEN, Helv. Phys. Acta 20, 495 (1947).
- <sup>17</sup>) W. ZÜNTI, Helv. Phys. Acta 21, 179 (1948).
- <sup>18</sup>) E. BLEULER und W. ZÜNTI, Helv. Phys. Acta 19, 375 (1946).
- <sup>19</sup>) H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK und P. SCHERRER, Helv. Phys. Acta 19, 77 (1946).
- <sup>20</sup>) H. Saurer, Helv. Phys. Acta 23 (1950), im Erscheinen.

\*) Nachtrag bei der Korrektur: Eine neue experimentelle Bestimmung des Spins von Mo<sup>95</sup> bestätigt den vermuteten Wert 5/2 (s. FEENBERG, Phys. Rev. 77, 774, 1950, priv. Mitt. J. E. MACK).

- <sup>21</sup>) M. I. HARMS, Ann. d. Physik 82, 87 (1920).
- <sup>22</sup>) A. H. COMPTON, Phil. Mag. 8, 961 (1929).
- <sup>23</sup>) P. MARMIER, J.-P. BLASER, H. MEDICUS und P. PREISWERK, Helv. Phys. Acta 21, 198 (1948).
- <sup>24</sup>) B. P. BURTT, Nucleonics 5, August 1949, 28.
- <sup>25</sup>) S. M. DANCOFF und P. MORRISON, Phys. Rev. 55, 122 (1939).
- <sup>26</sup>) M. H. HEBB und E. NELSON, Phys. Rev. 58, 486 (1940).
- <sup>27</sup>) P. AXEL und S. M. DANCOFF, Phys. Rev. 76, 892 (1949).
- <sup>28</sup>) A. BERTHELOT, Cah. de Physique 19, 117 (1944).
- <sup>29</sup>) C. Møller, Phys. ZS. d. Sowjetunion 11, 9 (1937).
- <sup>30</sup>) B. N. CACCIAPUOTI und E. SEGRÈ, Phys. Rev. 52, 1252 (1937).
- <sup>31</sup>) A. C. HELMHOLZ, Phys. Rev. **60**, 415 (1941).
- <sup>32</sup>) O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK und R. STEFFEN, Phys. Rev. 73, 1211 (1948).
- <sup>33</sup>) D. C. KALBFELL, Phys. Rev. 55, 422 (1939).
- <sup>34</sup>) E. J. WILLIAMS, Proc. Roy. Soc. London A 169, 531 (1939); Phys. Rev. 58, 292 (1940).
- <sup>35</sup>) E. J. KONOPINSKI, Rev. Modern Phys. 15, 209 (1943).
- <sup>36</sup>) J. E. HUDGENS und W. S. LYON, Phys. Rev. 75, 206 (1949).
- <sup>37</sup>) H. MEDICUS, A. MUKERJI, P. PREISWERK und G. DE SAUSSURE, Phys. Rev. 74, 839 (1948).
- <sup>38</sup>) K. SIEGBAHN, Proc. Roy. Soc. London A 188, 541 (1947).
- <sup>39</sup>) M. E. ROSE, G. GOERTZEL, B. SPINRAD, I. HARR und P. STRONG, privat verteilt.
- <sup>40</sup>) K. SIEGBAHN und A. GHOSH, Phys. Rev. 76, 307 (1949).
- <sup>41</sup>) H. MEDICUS, D. MAEDER und H. SCHNEIDER, Helv. Phys. Acta 22, 603 (1949).
- <sup>42</sup>) M. GOEPPERT-MAYER, Phys. Rev. 75, 1969 (1949).
- <sup>43</sup>) O. HAXEL, J. H. D. JENSEN und H. E. SUESS, Naturwissensch. 35, 376 (1948);
   36, 155 (1949).
- <sup>44</sup>) H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHER-RER und R. STEFFEN, Helv. Phys. Acta **20**, 153 (1947).
- <sup>45</sup>) L. W. NORDHEIM, Phys. Rev. **75**, 1894 (1949).
- <sup>46</sup>) E. FEENBERG und K. C. HAMMACK, Phys. Rev. 75, 1877 (1949).