

## Der Nachweis seltenen $\alpha$ -Zerfalls mit Hilfe der Photoplatte

Von ENGELBERT BRODA<sup>1</sup> und KURT JENKNER<sup>2</sup>, Wien

### Problemstellung

Bisher sind etwa zwanzig verschiedene natürliche  $\alpha$ -Strahler bekannt. Die Frage der Existenz bisher unentdeckter  $\alpha$ -Strahler in der Natur bietet vom Standpunkt mehrerer Wissenschaftszweige Interesse. Der Physiker kann aus dem Auftreten von Instabilität gegen  $\alpha$ -Zerfall Schlüsse auf den Bau von Atomkernen ziehen. Der Mineraloge und Geochemiker könnte durch die Entdeckung einer neuen Heliumquelle (jeder  $\alpha$ -Strahl gibt bei Bremsung ein Heliumatom) einige bisher rätselhafte Befunde aufklären. Zu diesen gehört der abnorm hohe Heliumgehalt mancher Minerale, besonders des Berylls<sup>3</sup>; dieser ist viel höher, als sich durch den Gehalt an Uran und Thorium erklären lässt. Dazu gehören auch gewisse «pleochroitische Höfe» in Glimmer<sup>4</sup>. Der Radius (1,8 cm Luftäquivalent) dieser durch Strahlenwirkung dunkel gefärbten Ringe, die neben den leicht identifizierbaren Ringen des Urans usw. auftreten, entspricht nicht der Reichweite eines bekannten Radioelements. Den Geologen, Paläontologen und Biologen wieder muß die Frage interessieren, ob eine bisher unbekannte  $\alpha$ -Strahlung zum Wärmehaushalt der Erde beiträgt oder – falls inzwischen abgeklungen – früher beigetragen hat.

Tatsächlich haben HEVESY und PAHL<sup>5</sup> vor verhältnismäßig nicht langer Zeit ein isoliertes, d.h. nicht der Uran-, Thorium- oder Aktiniumreihe angehöriges  $\alpha$ -strahlendes Element aufgefunden: das Samarium. Heute wissen wir, daß dem Samarium seine Aktivität durch das Isotop der Masse 147 verliehen wird<sup>6</sup>. In diesem Artikel soll nun über eine neue experimentelle Methode zur Auffindung bisher unentdeckter Strahler berichtet werden. Diese Methode – die Methode der Photoplatte – übertrifft die bisher bei der Suche nach  $\alpha$ -Strahlern verwendeten Methoden an Empfindlichkeit um mehrere Größenordnungen. Es soll vorweggenommen werden, daß keines der bisher untersuchten Elemente Aktivität aufweist. Die Aktivität hätte sich aber auffinden lassen müssen, wenn eines dieser Ele-

mente die Ursache des pleochroitischen Hofes oder des Überschußheliums gewesen wäre oder einen merklichen Beitrag zum Wärmehaushalt der Erde geliefert hätte.

Die energetische Möglichkeit für  $\alpha$ -Zerfall ist gegeben, wenn die Summe der Energieinhalte des beim Zerfall entstehenden Tochterkerns und eines Heliumkerns ( $\alpha$ -Teilchens) kleiner ist als der Energieinhalt des Mutterkerns. Diese Bedingung ist im allgemeinen am ehesten bei Kernen hoher Ladungszahl erfüllt. Die Coulombsche gegenseitige Abstoßungsenergie nimmt nämlich mit dem Quadrat der Ladungszahl  $Z$  zu, während die Bindungsenergie, die durch die spezifischen Kräfte des Atomkerns bedingt ist, nur etwa proportional der Massenzahl  $A$  des Kerns ansteigt; die letztere aber steigt, wie sich empirisch zeigt, weit weniger schnell als mit dem Quadrat der Ladungszahl, nämlich nur etwa gemäß  $A = Z + Z^{1,07}$  an. Die Stabilität muß also mit zunehmender Ladungszahl abnehmen. Bei eingehenderer Analyse findet man, daß Kerne der Ladungszahlen 60 oder mehr, also etwa von den seltenen Erden aufwärts, in der Regel instabil sein werden<sup>1</sup>. Allerdings kann der Instabilitätsgrad keine glatte Funktion von  $Z$  oder  $A$  bilden, da die Atomkerne eine gewisse Schalenstruktur besitzen. Man wird daher Stabilitätsmaxima und -minima erwarten. Der Kern

<sup>147</sup> Sm, d.h. der Kern des Samariumisotops <sup>147</sup>,

<sub>62</sub>

liegt offenbar in einem Minimum. (Der Index 62 bezeichnet die Ladungszahl.) Wegen der Feinstruktur der Energieinhaltskurve könnten gelegentlich auch Kerne mit  $Z < 60$  instabil sein.

Um den Zerfall beobachten zu können, muß er nicht nur energetisch möglich sein, sondern auch hinreichend rasch verlaufen. Die Geschwindigkeit des Zerfalls nimmt nun mit abnehmender Zerfallsenergie gemäß der Gamowschen Formel<sup>2</sup>

$$\log \lambda = 20,46 - 1,191 \cdot 10^9 \frac{Z-2}{v} + 4,084 \cdot 10^6 [r(Z-2)]^{1/2}$$

schnell ab. In der Formel stellt  $\lambda$  die Zerfallskonstante [je Zeiteinheit zerfallender Bruchteil; verbunden mit der Halbwertszeit  $\tau$  durch  $\tau = (\ln 2)/\lambda$ ],  $v$  die Ge-

<sup>1</sup> I. Chemisches Institut der Universität Wien.

<sup>2</sup> II. Physikalisches Institut der Universität Wien.

<sup>3</sup> Lord RAYLEIGH, Proc. Roy. Soc. [A] 142, 370 (1933). – J. W. J. FAY, E. GLÜCKAU und F. A. PANETH, Proc. Roy. Soc. [A] 165, 238 (1938).

<sup>4</sup> G. H. HENDERSON, Proc. Roy. Soc. [A] 173, 250 (1939).

<sup>5</sup> G. HEVESY und M. PAHL, Nature [London] 130, 846 (1932).

<sup>6</sup> B. WEAVER, Phys. Rev. 80, 301 (1950).

J. MATTIAUCH und S. FLÜGGE, *Kernphysikalische Tabellen* (Berlin 1942), Tafel 1. – T. P. KOHMAN, Phys. Rev. 76, 448 (1949).

<sup>2</sup> Zitiert in einer von N. F. MOTT gegebenen Form; *Handbuch der Physik* (Berlin 1933), Band XXIV/2.

schwindigkeit des  $\alpha$ -Teilchens und  $r$  den Kernradius dar. Die Geschwindigkeit des  $\alpha$ -Teilchens ist natürlich ein Maß der Zerfallsenergie. In Tabelle I sind die Zerfallsenergien für Kerne verschiedener Ladungszahl  $Z$  unter der Voraussetzung berechnet, daß die Halbwertszeit die vorgegebenen Werte  $10^8$ ,  $10^{12}$  und  $10^{16}$  Jahre annehmen soll. Der erste Wert entspricht ungefähr der Halbwertszeit, bei deren Annahme heute noch aktive Substanz erhalten sein könnte, der zweite Wert entspricht der Halbwertszeit des Samariums, und der dritte ist ungefähr der größte nach der Photoplattenmethode noch bestimmbarer Wert. Für Tabelle I wird als Kernradius nach BETHE<sup>1</sup> unter Vernachlässigung einer Schalenstruktur des Kerns der Wert  $1,5 \cdot 10^{-13} A^{1/3}$  eingesetzt. Für  $A$  wird der Wert gewählt, der dem häufigsten Isotop des Elements der Ladungszahl  $Z$  entspricht. Die Energien sind, wie in der Kernphysik üblich, in Mega-Elektron-Volt (MeV) ausgedrückt.  $1 \text{ MeV} = 1,6 \cdot 10^{-6} \text{ erg}$ .

Tabelle I

Kernart	Zerfallsenergie für		
	$\tau = 10^8$ Jahre	$\tau = 10^{12}$ Jahre	$\tau = 10^{16}$ Jahre
$Z = 70, A = 174; {}^{174}_{70} \text{Yb}$ .	3,2	2,8	2,5
$Z = 50, A = 120; {}^{120}_{50} \text{Sn}$ .	1,9	1,7	1,5
$Z = 30, A = 64; {}^{64}_{30} \text{Zn}$ .	0,85	0,75	0,65

Die Tabelle zeigt, daß die Zerfallsenergie für jeden Kern innerhalb eines relativ engen Intervalls liegen muß, wenn der Zerfall zwar einerseits experimentell nachweisbar sein soll, andererseits aber das Element in unserer geologischen Epoche nicht schon praktisch vollständig zerfallen sein soll. Die «passenden» Zerfallsenergien sind, wie man sieht, für mittelschwere viel größer als für leichte Elemente. Dies gilt um so mehr für die schweren Strahlern, die den radioaktiven Reihen angehören: sogar die geringste innerhalb der Reihen beobachtete  $\alpha$ -Zerfallsenergie, nämlich die des Thoriums, beträgt immerhin noch 4,2 MeV. Dieser Unterschied ist vom experimentellen Standpunkt ein Vorteil, da er bei Einhaltung der richtigen Versuchsbedingungen eine Verwechslung einer «neuen» Strahlung mit Strahlung, die einer radioaktiven Verunreinigung entstammt, ausschließt.

#### Die Photoplatte als überlegenes Meßgerät

Bisher hat man bei der Suche nach neuen  $\alpha$ -aktiven Stoffen hauptsächlich die Ionisationskammer verwendet<sup>2</sup>. Eine Schicht des zu prüfenden Materials wird in die gasgefüllte Kammer eingeführt. Die Kammer ist hinreichend groß, um alle  $\alpha$ -Strahlen bis zum Ende

ihrer Bahn aufzunehmen. Das an die Kammer angelegte elektrische Feld reicht hin, um alle bei der Bremsung der Strahlen entstehenden Ionen des Füllgases zu sammeln. Es reicht aber nicht hin, den Ionen Stoßionisation, d. h. die Erzeugung einer Ionenlawine, zu ermöglichen. In diesem Bereich ist, wie man schon lange experimentell gefunden hat, die Ionenzahl der Energie des Strahles proportional. Demnach wird unabhängig von der Reichweite des Strahls ein konstanter Bruchteil seiner Energie zur Erzeugung von Ionen verwendet. Man kann also aus der Größe des Stromstoßes auf die Energie des in die Kammer eintretenden  $\alpha$ -Strahls schließen.

Allerdings ist diese Energie nur dann mit der ursprünglichen Energie des Strahls bei Emission durch den Atomkern identisch, wenn die emittierende Schicht dünn ist. Zum Beispiel verliert ein  $\alpha$ -Strahl des Poloniums schon etwa ein Fünftel seiner Ursprungsenergie, wenn er eine Schicht von  $1 \text{ mg/cm}^2$  (ungefähr 8 mm Luft oder  $4 \mu$  Aluminium) durchsetzen muß. Man muß also mit sehr dünnen Schichten arbeiten, wenn man die Strahlung durch ihre Energie identifizieren will. Findet man etwa eine Aktivität, die von einer dicken Schicht eines sonst für inaktiv gehaltenen Materials ausgeht, so muß man damit rechnen, daß sie durch eine radioaktive Verunreinigung bedingt ist. Zum Beispiel ist Polonium fast allgegenwärtig. Ein bindender Schluß ist aber kaum möglich, da ja die charakteristische Energie der Strahlung bei allen aus der Tiefe der Schicht stammenden Strahlen in einem unbekannten Maß herabgesetzt ist. Andererseits ist bei Verwendung dünner Schichten die Intensität der Strahlung gering, wenn die Halbwertszeit groß ist; gerade aber Strahler mit langer Halbwertszeit interessieren in diesem Zusammenhang. So emittiert Samariumoxyd in einer Schicht von  $0,1 \text{ mg/cm}^2$ , in der sogar bei lotrechter Emission schon ca. 7% der Anfangsenergie verlorengehen, halbseitig nur mehr etwa 40 Teilchen/Stunde/cm<sup>2</sup>. Bei Stoffen mit noch längerer Halbwertszeit tritt schon die Aktivität der Kammerwände störend in Erscheinung, die auch durch Beimengungen verursacht ist und mindestens 0,03 Teilchen/Stunde/cm<sup>2</sup>, sehr oft aber auch sehr viel mehr, ausmacht<sup>1</sup>. Man erkennt also, daß der Ionisationskammermethode beim Nachweis schwacher  $\alpha$ -Strahler ziemlich enge Grenzen gesetzt sind.

Dies würde um so mehr für das Geiger-Zählrohr gelten. Im Zählrohr ist ja die Stärke der Stromstoße von dem Betrag der Primärionisation unabhängig. Daher ist es überhaupt nicht möglich, die einzelnen Stoße Strahlen verschiedener Energie zuzuordnen. Es ist nicht einmal möglich, zwischen  $\alpha$ -,  $\beta$ - und Höhenstrahlen zu unterscheiden.

Hier bewährt sich nun die Photoplatte. Die photographische Wirkung radioaktiver Strahlung (Summe

<sup>1</sup> H. A. BETHE, *Elementary Nuclear Theory* (New York, 1948).

<sup>2</sup> H. ZIEGERT, Z. Phys. 46, 668 (1928). — J. SCHINTLMEISTER Sitz.-Ber. Akad. Wiss. Wien 145, 449 (1936).

<sup>1</sup> H. ZIEGERT, Z. Phys. 46, 668 (1928). — J. A. BEARDEN, Phys. Rev. 43, 376 (1933).

der Wirkungen vieler Strahlen) hat bekanntlich zur Entdeckung der Radioaktivität durch BECQUEREL geführt. Individuelle  $\alpha$ -Strahlen wurden erst etwa 15 Jahre später durch die Reihen geschwärzter Körner nachgewiesen, die sie in Emulsionen erzeugen<sup>1</sup>. Nach etwa drei weiteren Jahrzehnten wurde die Photoplatte in den Händen von ZHDANOW, POWELL, DEMERS, BERRIMAN und anderen zu einem Präzisionsinstrument der Kernphysik. Es gelang nämlich, «konzentrierte» Emulsionen herzustellen, die statt der üblichen 10% nicht weniger als 80% Bromsilber (dazu meist einige Prozent

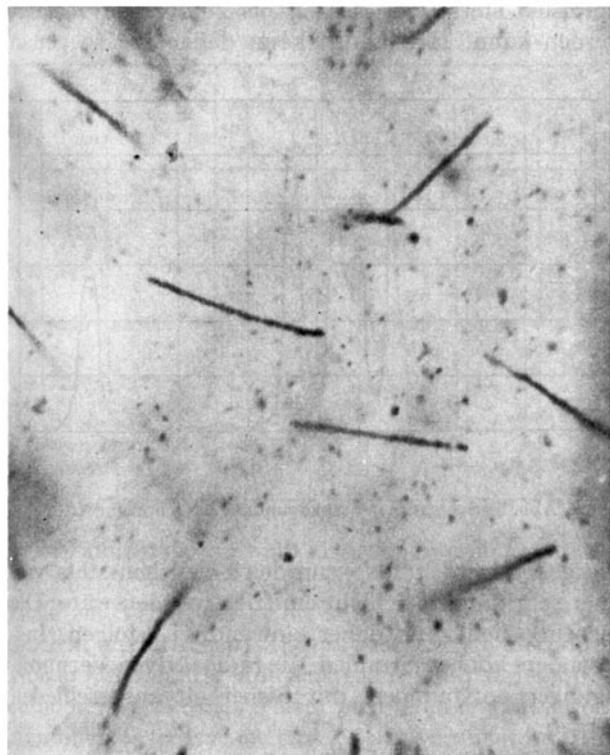


Abb. 1. Spuren von Uran I und Uran II.

Jodsilber) enthalten. Über diese konzentrierten Emulsionen ist an dieser Stelle auch im Artikel HEITLER, KING<sup>2</sup> berichtet worden, wobei besonders auf die Verwendung zur Erforschung der kosmischen Strahlen eingegangen wurde. In diesen Platten erscheinen die Spuren als fast lückenlose Kornfolgen. Man kann daher die Spurlängen mit großer Genauigkeit feststellen<sup>3</sup>. Die Abbildungen 1, 2 und 3 zeigen mit «Ilford-C 2»-Platten aufgenommene Spuren von Uran, Samarium und den kurzlebigen  $\alpha$ -aktiven Abkömmlingen von Thorium X. Die Strahlen erscheinen in Form von Sternen, wenn ein Kern während der Exposition mehreren aufeinanderfolgenden  $\alpha$ -Zerfällen unterliegt, wie dies beim Tho-

rium X zutrifft. Angesichts der geringen Tiefenschärfe erscheinen natürlich nur horizontale Spuren in ihrer vollen Länge scharf. In Abb. 1 ist die vergrößerte Kordichte am Spurende (rechts) der mittleren Spur (einer Spur von Uran II) deutlich sichtbar.

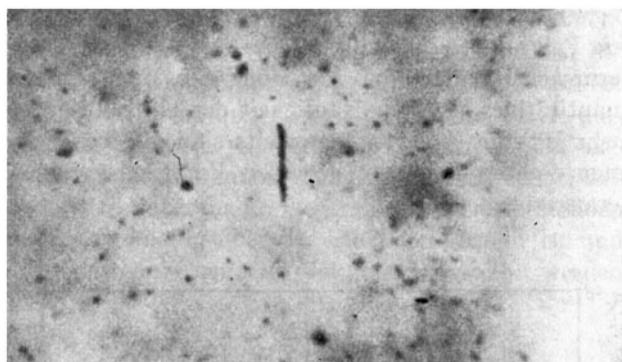


Abb. 2. Eine Samariumspur.

Spektren können in der Weise aufgenommen werden, daß zunächst die Länge der Horizontalprojektion der Spur mit Hilfe des Okularmikrometers des Mikroskops gemessen wird. Sodann wird die Höhendifferenz zwischen Anfang und Ende der Spur bestimmt, indem mit dem Höhentrieb des Mikroskops auf diese beiden Punkte scharf eingestellt wird. Dabei muß berücksichtigt werden, daß die Dicke der Emulsion und damit alle Höhendifferenzen beim Fixieren etwa um die Hälfte schrumpfen. Dann wird die wahre Länge der

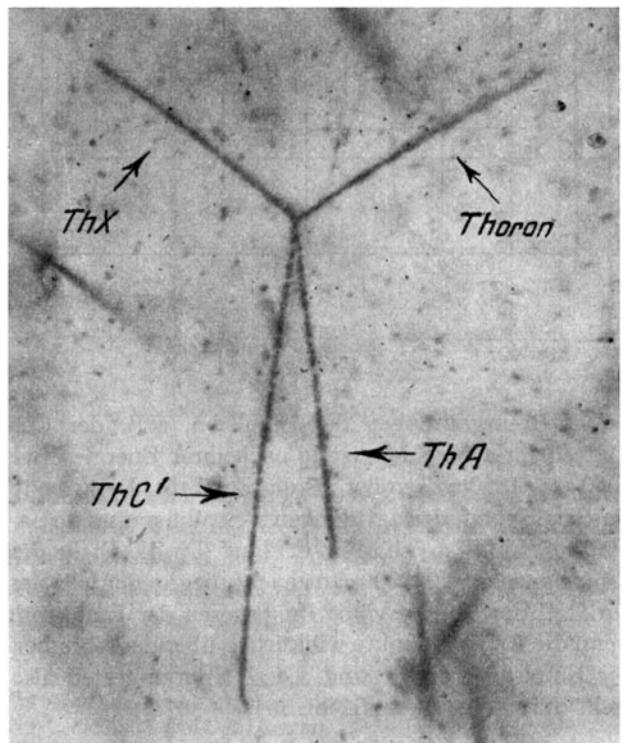


Abb. 3. Ein Thorium-X-Stern.

<sup>1</sup> Siehe H. YAGODA, *Radioactive Measurements with Nuclear Emulsions* (New York, 1949).

<sup>2</sup> H. K. HEITLER und D. T. KING, *Exper.* 6, 281 (1950).

<sup>3</sup> Siehe H. YAGODA, *Radioactive Measurements with Nuclear Emulsions* (John Wiley, New York, 1949). — C. F. POWELL, G. P. S. OCCHIALINI, D. L. LIVESLEY und L. V. CHILTON, *J. Sci. Instr.* 23, 102 (1946).

Spur mit dem pythagoräischen Lehrsatz aus Horizontalprojektion und Höhe berechnet. Schließlich wird die Zahl der Spuren gegen ihre Länge aufgetragen. Die Abb. 4 und 5 zeigen die Spektren des Samariums<sup>1</sup> und des Thorium X samt Abkömmlingen. Die Streuung ist am kleinsten, wenn nur annähernd horizontale Spuren verwendet werden (zum Beispiel Abb. 5). Die in diesem Fall notwendige willkürliche Auswahl der Spuren verursacht freilich, daß die Höhe der Maxima kein quantitatives Maß der Häufigkeit der  $\alpha$ -Strahlgruppe mehr ist. Für Abb. 4 andererseits sind alle beobachteten Spuren in einem gewissen Emulsionsvolumen herangezogen worden.

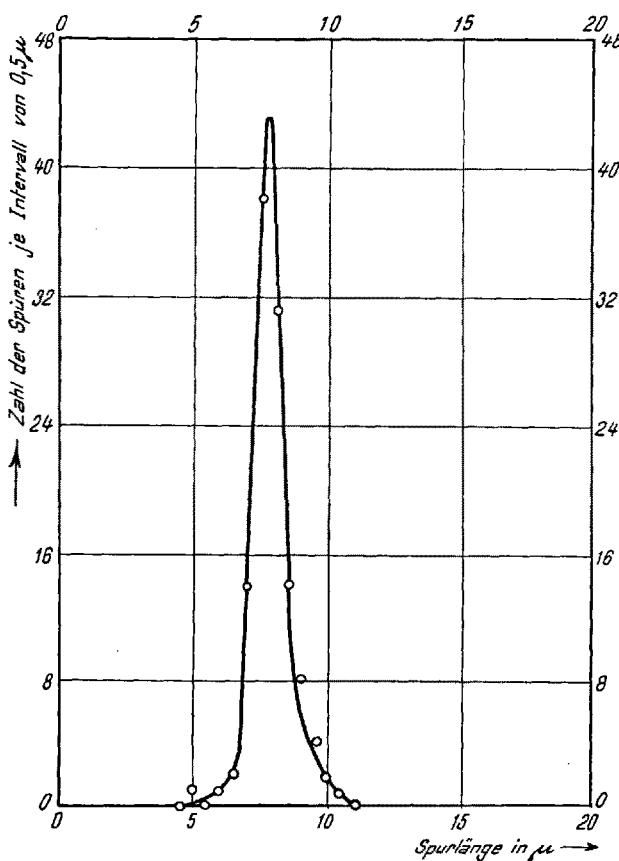


Abb. 4. Spektrum des Samariums.

Das Bremsvermögen der Emulsion, z.B. der C 2-Platten für  $\alpha$ -Strahlen, ist je nach ihrer Energie etwa 1650- bis 1850mal größer als das der Luft. Demgemäß sind die Spuren der natürlichen  $\alpha$ -Strahlen etwa 7 (Samarium) bis 46  $\mu$  (Thorium C) lang. Da die Dicke der Emulsionen ca. 20-200  $\mu$  ausmacht, liegt jedenfalls der Großteil der Spuren völlig im Inneren der Emulsion, wenn die Anfangspunkte willkürlich über das Volumen der Emulsion verteilt sind. Diese Spuren treten also nicht durch eine Grenzfläche aus.

<sup>1</sup> F. BESTENREINER und E. BRODA, Nature [London] 164, 658 (1949).

Die Halbwertsbreite der  $\alpha$ -Strahlgruppe, z.B. des Uran I, beträgt bei Vermessung horizontaler Spuren etwa 1,3  $\mu^1$ , was 2,2 mm Luft entspricht. Diese Halbwertsbreite ist hauptsächlich durch die ungleichmäßige Verteilung und die ungleiche Größe der Silberkörner (Durchmesser etwa ein halbes Mikron) verursacht. Sie übertrifft die entsprechende Halbwertsbreite bei der Messung einer Reichweite in der Ionisationskammer bei Verwendung dünner emittierender Schichten. Dieser Nachteil ist für den vorliegenden Zweck nicht erheblich. Er wird aber bei weitem durch den außerordentlichen Vorteil aufgewogen, daß die Spur in der Emulsion stets vom Anfang bis zum Ende verfolgt werden kann. Ihre Länge kann daher ebenso genau

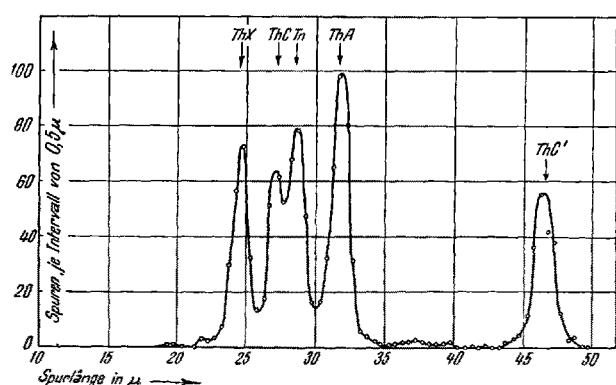


Abb. 5. Spektrum der Abkömmlinge des Thorium X.

angegeben werden, als wenn das  $\alpha$ -Teilchen stets von einer sehr dünnen Schicht emittiert worden wäre. Die Identifikation kann daher einwandfrei erfolgen. Insbesondere können Strahlen, die radioaktiven Verunreinigungen entstammen, mit Sicherheit ausgeschieden werden.

#### Technik des Tränkens

Um die zu untersuchende Substanz in die Emulsion einzuführen, wird ein Stück Platte in eine Lösung dieser Substanz gelegt. Die Gelatine quillt und nimmt auch gelöste Substanz auf. Bei Zimmertemperatur stellt sich das Quellungsgleichgewicht erst nach einigen Tagen ein, doch ist nach etwa 10-20 Minuten Halbsättigung erreicht<sup>2</sup>. Nach der Tränkung wird die Platte rasch oberflächlich abgespült, getrocknet und dann einige Tage, Wochen oder Monate liegengelassen (exponiert). Die Strahlen wirken während dieser Zeit auf die Emulsion ein. Nach beendeter Expositionszeit wird entwickelt und fixiert.

Man findet, daß der gelöste Stoff in der trockenen Emulsion gegenüber seiner Konzentration in der Tränk-

<sup>1</sup> C. F. POWELL, G. P. S. OCCHIALINI, D. L. LIVESLEY und L. V. CHILTON, J. Sci. Instr. 23, 102 (1946). — F. BESTENREINER, Diss. Wien (1949).

<sup>2</sup> E. BRODA, Nature [London] 160, 231 (1947). — E. PICCIOTTO, C. r. Acad. Sci., Paris 228, 173 (1949); Note No. 4, Centre de physique nucléaire, Université libre, Bruxelles.

lösung angereichert ist<sup>1</sup>. Die Anreicherung röhrt zum kleineren Teil von der Kontraktion der gequollenen Emulsion beim Trocknen, zum größeren Teil jedoch von einer Adsorption durch die Emulsion, die ja ein System mit großer innerer Oberfläche darstellt. Der bestimmende Einfluß der Adsorption wird schon daran erkannt, daß der Anreicherungsgrad mit abnehmender Konzentration der Lösung stark zunimmt. Die Aufnahme läßt sich geradezu durch eine Adsorptionsisotherme darstellen<sup>2</sup>. Das Verhältnis der Konzentration in der Emulsion zu der Konzentration in der Lösung sei als «Eindringfaktor» bezeichnet.

Tabelle II

Gelöste Substanz	Aktiv gemacht durch Zusatz von	$\beta_{H^+}$ -Wert	Konzentration		
			0,1%	0,3%	1,0%
Bariumchlorid . . .	Radium	4	4,1	3,1	1,9
		5	15	6,0	2,0
		6	18	8,3	3,0
Bleiazetat . . . .	Thorium B	4	4,7	3,6	1,9
		6	26	14	4,8
Samariumazetat . .	—	4	5,1	2,6	0,9
		5	12	5,1	1,8
		6	16	6,2	2,1
		7	20	7,7	2,5
Thoriumnitrat, von Folgeprodukten befreit	—	4	7,9	5,9	3,5

Der Eindringfaktor muß für jedes System empirisch abgeschätzt werden. Wenn eine genügende Plattenfläche zur Verfügung steht, kann dies nach einer der üblichen analytischen, z. B. gravimetrischen Methoden erfolgen<sup>3</sup>. Eleganter und sparsamer sind radioaktive Methoden<sup>4</sup>. Ein Stück Platte wird in einer Lösung bekannter Konzentration eines  $\alpha$ -aktiven Isotops (bekannter Halbwertszeit) des Elementes, gegebenenfalls in Mischung mit dem inaktiven Element, getränkt. Der Eindringfaktor wird aus der Zahl der Spuren ermittelt, die sich nach einer gewissen Zeit in der Volumseinheit finden. Die Tabelle II gibt Werte des Eindringfaktors verschiedener Ionen wieder<sup>5</sup>. Die Werte wurden durch halbstündiges Tränken von «Ilford-C 2»-Platten bei Zimmertemperatur erhalten.

Man erkennt also, daß der Eindringfaktor (1) mit abnehmender Konzentration zunimmt und daß er (2) mit abnehmender Azidität zunimmt, und zwar insbesondere in verdünnteren Lösungen. Man hat offenbar in den konzentrierteren und stärker sauren Lösungen besser reproduzierbare Eindringung. Eine Tränkung

<sup>1</sup> E. BRODA, Nature [London] 160, 231 (1947). — E. PICCIOTTO, C. r. Acad. Sci., Paris 228, 173 (1949); Note No. 4, Centre de physique nucléaire, Université libre, Bruxelles.

<sup>2</sup> E. BRODA, Nature [London] 160, 231 (1947).

<sup>3</sup> E. BRODA, Nature [London] 158, 872 (1946).

<sup>4</sup> E. BRODA, Nature [London] 158, 872 (1946). — K. JENKNER und E. BRODA, Nature [London] 164, 412 (1949).

<sup>5</sup> K. JENKNER, Diss. Wien (1949).

mit mehr als 1%igen Lösungen muß aber vermieden werden, wenn die Qualität der Spuren nicht zu stark durch Desensibilisierung der Emulsion leiden soll. Auch die Arbeit mit sauren Lösungen kann Desensibilisierung verursachen, wie im folgenden Abschnitt ausgeführt wird.

Statt der «Tränkmethode» kann auch eine «Tropfemethode» angewendet werden<sup>1</sup>. In diesem Fall ist die Eindringung von vornherein bekannt. Es wird nämlich ein Tropfen bekannten Gewichtes auf der Platte eintröcknen gelassen. Alle gelösten Atome werden also von der Emulsion aufgenommen. Der Nachteil ist, daß die gelöste Substanz im Gegensatz zur Tränkmethode nicht gleichmäßig über die Emulsion verteilt ist und daher das ganze benetzte Volumen ausgezählt werden muß.

#### Desensibilisierung und Heilung

Mancherlei Stoffe verringern die Empfindlichkeit der Emulsion, indem sie einen Teil der Bromsilberkörner unentwickelbar machen. In diesem Zusammenhang sind Oxydationsmittel und Wasserstoffionen besonders interessant. Die desensibilisierende Wirkung des Oxydationsmittels Chromsäure wurde schon früh von WAMBACHER<sup>2</sup> benutzt, um zwischen den stärker ionisierenden  $\alpha$ -Strahlen und den weniger stark ionisierenden H-Strahlen (Protonen) zu unterscheiden. Auch zur Unterscheidung zwischen den  $\alpha$ -Strahlen und den noch stärker ionisierenden Spaltprodukten des Urans ist

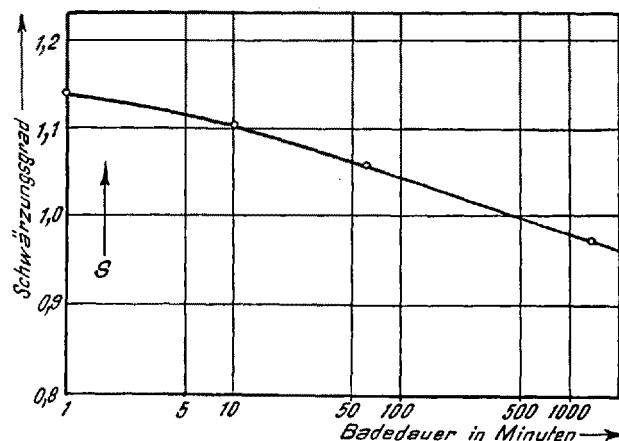


Abb. 6. Desensibilisierung durch Behandlung verschiedener Dauer mit Essigsäure.

Chromsäurebehandlung geeignet<sup>3</sup>. Neuerdings wurde die Desensibilisierung in Abhängigkeit von der Chromsäurekonzentration und von der Behandlungsdauer eingehend untersucht<sup>4</sup>. Besonders wichtig ist aber der Einfluß der Wasserstoffionen, da die Kationen, die in

<sup>1</sup> P. CUER und C. M. G. LATTES, Nature [London] 158, 197 (1946).

<sup>2</sup> H. WAMBACHER, Sitz.-Ber. Akad. Wiss. Wien 140, 271 (1931).

<sup>3</sup> L. L. GREEN und D. L. LIVESLEY, Cambridge (1946); persönliche Mitteilung. — E. BRODA, Nature [London] 158, 872 (1946). — L. L. GREEN und D. L. LIVESLEY, Philos. Trans. Roy. Soc. [A] 241, 323 (1948).

<sup>4</sup> K. JENKNER, Diss. Wien (1949).

die Emulsion eingeführt werden sollen, oft nur mit Hilfe von Säure in Lösung gehalten werden können. Abb. 6 und 7 zeigen, wie sehr die Empfindlichkeit der Platte schon durch die schwache Essigsäure herabgesetzt wird. Als Ordinaten dienen die Schwärzungsgrade (Logarithmus des Verhältnisses von auffallendem und durchgehendem Licht nach Schwärzung mit einer Standard-Röntgenstrahldosis). Umgekehrt wird die Emulsion durch Behandeln mit Ammoniaklösung sensibilisiert. Wenn der Ammoniak zu stark ist, tritt allerdings völlige Schwärzung ein. Es empfiehlt sich also, die Platte in verdünntem Ammoniak nachzubaden, wenn man gezwungen ist, in saurer Lösung zu tränken – vorausgesetzt natürlich, daß die eingeführte Substanz in Ammoniak unlöslich ist, also beim Nachbaden nicht wieder herausgewaschen wird. Übrigens wird durch die Neutralisation der Emulsion auch die Wirkung des Entwicklers verstärkt.

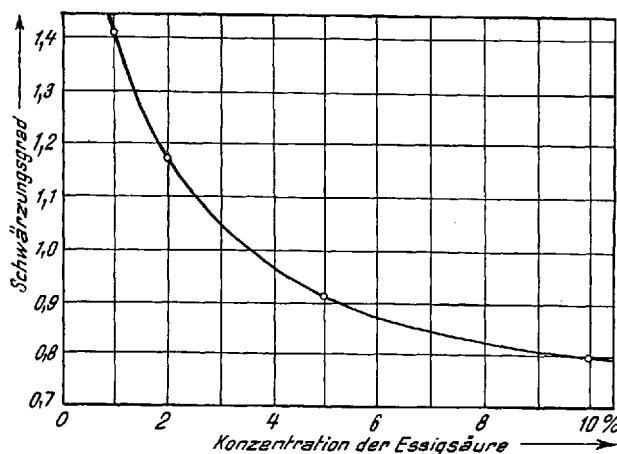


Abb. 7. Desensibilisierung durch Behandlung mit Essigsäure verschiedener Stärke.

Das latente Bild geht bei der Lagerung spontan zurück. Der Vorgang kann als Heilung (fading) bezeichnet werden. Spuren, die vor längerer Zeit erzeugt wurden sind, lassen sich also nicht voll entwickeln. Statt einer lückenlosen Spur erscheint – ebenso wie bei Desensibilisierung – eine Punktreihe. Die Erscheinung ist für die Identifizierung von  $\alpha$ -Strahlen nicht so ernst, wie es auf den ersten Blick scheinen könnte, da ja der Korndurchmesser im Vergleich zur Spurlänge sehr klein ist. Daher wird sogar der Ausfall eines großen Teils der Körner keine wesentliche Verringerung der mittleren Spurlänge verursachen. Dies wird durch Tabelle III (Versuche mit Polonium an verschiedenen stark desensibilisierten Platten<sup>1</sup>) veranschaulicht.

Die Heilung ist vielfach unter verschiedenen Bedingungen quantitativ verfolgt worden<sup>2</sup>. Eine befriedi-

Tabelle III

Mittlere Korndichte (Körner/10 $\mu$ )	Spurlänge ( $\mu$ )	Schwankung ( $\mu$ )
15,4	22,2	0,7
14,1	22,1	0,7
12,5	22,0	0,75
10,8	21,6	0,95
9,0	21,0	1,2

gende Hypothese über den Mechanismus der Desensibilisierung durch H-Ionen und der Heilung ist kürzlich vorgeschlagen worden<sup>1</sup>. Es dürfte sich im wesentlichen um einen Oxydationsvorgang der empfindlichen Zentren am Silberbromid, die aus Silber oder Silbersulfid bestehen, handeln. Dementsprechend läßt sich die Heilung durch Lagerung unter geeigneten Bedingungen weitgehend einschränken. Außerdem kann man sich bei der Suche nach unbekannten  $\alpha$ -Strahlern vor Irrtümern durch Spurenverlust während der Lagerung dadurch schützen, daß man Kontrollplatten mitlager, in denen man zu Beginn der Lagerungszeit Spuren erzeugt hat.

### Ergebnisse

Die Zahl  $N$  der Spuren in  $n$  Gesichtsfeldern des Mikroskops (jedes entsprechend dem zylindrischen Volumen  $v$ , welches eine Korrektur dafür beinhaltet, daß ein Teil der Spuren, die in der oberen oder unteren Grenzzone entstehen, durch die Grenzfläche treten und daher ausgeschieden werden müssen) ist mit der Expositionszeit  $t$  durch die Spurenzahlgleichung

$$N = n v c f L \lambda t$$

verknüpft.  $f$  bedeutet den Eindringfaktor,  $c$  die Konzentration der Lösung ( $\text{Mol}/\text{cm}^3$ ),  $L$  die Loschmidttsche Zahl und  $\lambda$  die Zerfallskonstante. In Tabelle IV sind die bisher erhaltenen Ergebnisse zusammengestellt<sup>2</sup>. In allen Fällen wurden entweder gar keine Spuren oder nur Spuren gefunden, die bekannten Radioelementen entstammen. Daher können nur untere Grenzen der Halbwertszeiten angegeben werden. Zur Auswertung der Spurenzahlgleichung mußten die Eindringfaktoren auf Grund der früher beschriebenen Versuche mit Radioelementen recht grob abgeschätzt werden. Die Schätzung ist vorsichtig vollzogen worden, d.h. die Eindringfaktoren sind stets gering angenommen worden. Die Notwendigkeit der Schätzung kann aber das Ergebnis in bezug auf die hier gestellte Aufgabe nicht ernstlich beeinträchtigen. Es handelt sich ja zunächst um den Nachweis, daß die untersuchten Elemente, wenn sie überhaupt  $\alpha$ -aktiv sein sollten, jedenfalls allermindestens um drei Größenordnungen weniger aktiv

<sup>1</sup> F. BESTENREINER, Diss. Wien (1949).

<sup>2</sup> Siehe H. YAGODA, *Radioactive Measurements with Nuclear Emulsions* (John Wiley, New York, 1949). – H. LAUDA, Sitz.-Ber. Akad. Wiss. Wien 145, 707 (1936). – G. ALBOUY und H. FARAGGI, J. Phys. Radium 10, 105 (1949).

<sup>1</sup> G. ALBOUY und H. FARAGGI, J. Phys. Radium 10, 105 (1949).

<sup>2</sup> F. BESTENREINER und E. BRODA, Nature [London] 164, 658 (1949). – K. JENKNER und E. BRODA, Nature [London] 164, 412 (1949). – F. BESTENREINER und E. BRODA, Nature [London], 164, 919 (1949).

Tabelle IV

Element	Chemische Form	Untere Grenze der Halbwertszeit ( $10^{15}$ Jahre)
Titan	Titankaliumfluorid	4
Zink	Zinknitrat	4
Rubidium	Rubidiumchlorid	17
Strontium	Strontiumlaktat	3
Zirkon	Zirkonoxynitrat	2
Molybdän	Ammoniummolybdat	9
Kadmium	Kadmiumsulfat	6
Zäsim	Zäsimkarbonat	4
Praseodym	Praseodymazetat	4
Neodym	Neodymnitrat	0,3
Samarium <sup>1</sup>	Samariumnitrat	0,1
Blei	Bleinitrat	3
Wismut	Wismutammoniumzitrat	3
Samarium (zum Vergleich)		0,0010
Thorium (zum Vergleich)		0,000014

sind als das Samarium. Man erkennt die erstaunliche Empfindlichkeit der Methode. Die Empfindlichkeit läßt sich bei Konzentration auf ein bestimmtes Element gewiß noch um zwei Größenordnungen weiter verbessern. Die Expositionsdauern bei den Versuchen gemäß Tabelle IV betrugen nämlich gewöhnlich nur etwa zwei Monate, und zumeist wurden nur etwa tausend Gesichtsfelder je Element untersucht.

Aus den Daten für die Elemente 60 und 62 (Nd und Sm) lassen sich Schlüsse auf die Nichtexistenz eines  $\alpha$ -strahlenden Isotops des Elements 61 in der Natur ziehen<sup>2</sup>. Der zu Beginn erwähnte pleochroitische Hof war nämlich gelegentlich einem solchen Isotop zugeschrieben worden. Da die seltenen Erden stets miteinander vergesellschaftet auftreten, müßte sich Element 61 nach der Fraktionierung zum Teil beim Nd, zum Teil beim Sm befinden. Tatsächlich wurde aber keine solche Aktivität aufgefunden. Quantitativ darf geschlossen werden, daß die Aktivität des Elements 61 in Mineralien der seltenen Erden, etwa im Monazit, gewiß nicht mehr als 2% der Aktivität des Sm ausmachen kann. Es ist auch unwahrscheinlich, daß eine solche Aktivität in früheren Epochen wesentlich höher war als heute, d.h. daß das Element inzwischen ausgestorben ist<sup>3</sup>.

<sup>1</sup> Außer der bekannten Gruppe von etwa 7  $\mu$ .

<sup>2</sup> F. BESTENREINER und E. BRODA, Nature [London] 164, 658 (1949); Nature [London], im Druck.

<sup>3</sup> F. BESTENREINER und E. BRODA, Nature [London] 164, 658 (1949).

Die Daten für Blei und Wismut zeigen innerhalb der erreichten Genauigkeit, daß die vier radioaktiven Reihen tatsächlich mit den bekannten Endgliedern ihren Abschluß finden:

$^{206}_{82}$  Pb (Uranreihe),  $^{207}_{82}$  Pb (Aktiniumreihe),

$^{208}_{82}$  Pb (Thoriumreihe) und  $^{209}_{83}$  Bi (Neptuniumreihe).

Zusammenfassend muß also festgestellt werden, daß eine  $\alpha$ -Strahlung, die den anomalen Heliumgehalt von Mineralen, besonders des Berylls, und die anomalen pleochroitischen Höfe erklären könnte, bisher noch nicht aufgefunden wurde. Die Photoplattenmethode wird aber die Feststellung gestatten, ob ein Element eine solche Strahlung emittiert.

#### Summary

It is theoretically possible that other medium-heavy elements, in addition to samarium, are faintly  $\alpha$ -active. Such activity could account for the anomalous helium content of certain minerals and for a pleochroic halo in mica of 1-8 cm range in air.

The  $\alpha$ -ray energy required to give reasonable half-lives has been worked out from Gamow's formula. The energies and ranges of the rays would be much smaller than those of known  $\alpha$ -ray emitters, except samarium. Therefore, any new groups could be distinguished by a suitable technique from groups due to radioactive contamination.

The photographic technique is suitable. Emulsions rich in silver bromide (80% by weight) are impregnated with solutions of substances to be tested and exposed for a period after drying. The rays emitted during exposure produce tracks, the lengths of which are measured with a microscope. Tracks of different energies are readily distinguished, since their full lengths are visible. Therefore, the emulsion is equivalent in this respect to an ionization chamber lined with a very thin film of the substance. On the other hand, the sensitivity of the photographic plate method far exceeds that of the ionization chamber method with thin films.

The procedure required in order to avoid excessive desensitization of the emulsion during treatment with the solutions, and fading of the tracks during prolonged exposure, has been discussed.

Results are given for the elements Ti, Rb, Zn, Sr, Zr, Mo, Cd, Cs, Pr, Nd, Pb, and Bi. No new activities have been found, but lower limits of the half-lives of these elements for  $\alpha$ -decay have been set. These limits exceed the half-life of thorium by up to six orders of magnitude. It is shown that Sm does not emit a second group of rays, and that no  $\alpha$ -active isotope of element 61 exists in nature in appreciable quantity.