

Umwandlung von Chlor 35 mit thermischen Neutronen unter Aussendung von Protonen

Von WERNER MAURER*

(Z. Naturforschg. 4a, 150—152 [1949]; eingegangen am 6. September 1948)

Mit Chlor von geänderter Isotopenzusammensetzung wird gezeigt, daß das langlebige Schwefelisotop von 88 Tagen HZ die Massenzahl 35 hat und bei der Neutronenbestrahlung von Chlor durch die Reaktion ${}_{17}\text{Cl}^{35}(\text{n}, \text{p}){}_{16}\text{S}^{35}$ (88 Tage) entsteht.

Diese Umwandlung verläuft auch mit thermischen Neutronen. Aus Aktivitätsmessungen ergab sich ein Wirkungsquerschnitt von $0,29 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$, bezogen auf reines Cl^{35} . Der Wirkungsquerschnitt des Prozesses ${}_{30}\text{Zn}^{64}(\text{n}, \text{p}){}_{29}\text{Cu}^{64}$ (12,8 Stdn.), der energetisch auch mit thermischen Neutronen verlaufen müßte, ergab sich zu $< 10^{-29} \text{ cm}^2$. Diese Wirkungsquerschnittsmessungen stehen im Einklang mit einfachen theoretischen Überlegungen.

Es werden Angaben über die Ausbeute an S^{35} -Präparaten gemacht.

Bei der Bestrahlung von Chlor mit schnellen Neutronen entsteht ein aktives Schwefelisotop mit einer Halbwertszeit (HZ) von 88 Tagen. Da die obere Grenze seines β -Spektrums nur 107 kV beträgt, muß die Kernreaktion energetisch auch mit thermischen Neutronen verlaufen können. Die Protonenenergie sollte dann gleich der Differenz von Neutronen- und Protonenmasse vermindert um 107 kV sein. Das ergibt einen Betrag von 650 kV.

Der Wirkungsquerschnitt (WQ) dieser Reaktion ist von Kamen¹ für ein Neutronenspektrum von maximal 20 eMV zu $2 \pm 1 \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2$ gemessen worden. Nach der gleichen Arbeit ist der Effekt mit Paraffin verstärkbar und mit Cadmium absorbierbar. Er verläuft also auch mit thermischen Neutronen.

Bisher sind fünf Umwandlungen mit thermischen Neutronen unter Aussendung von geladenen Teilchen bekannt. Es sind dies $\text{Li}^6(\text{n}, \alpha)$, $\text{B}^{10}(\text{n}, \alpha)$, $\text{B}^{10}(\text{n}, \text{p})$, $\text{N}^{14}(\text{n}, \text{p})$ und $\text{F}^{19}(\text{n}, \alpha)$. Eine weitere Umwandlung dieser Art bei Chlor mit seiner hohen Ordnungszahl 17 ist erstens prinzipiell und zweitens im Hinblick auf eine Möglichkeit zur Herstellung starker Schwefelpräparate von Interesse. Im folgenden wird über eine Wiederholung des Kamenschen Versuchs unter verbesserten Bedingungen berichtet, über die Messung des WQ von $\text{Cl}^{35}(\text{n}, \text{p})\text{S}^{35}$ für thermische Neutronen und über die Zuordnung des Prozesses mit an Cl^{37} angereichertem Chlor.

Das langlebige Schwefel-Isotop ist herstellbar durch die Prozesse $\text{Cl}(\text{n}, \text{p})$ und $\text{S}(\text{d}, \text{p})$. Danach kommen die Massenzahlen 35 oder 37 in Frage. Unter der Annahme, daß die Masse = 35 ist, fand Kamen¹ für den dann vorliegenden $\text{S}^{34}(\text{d}, \text{p})\text{S}^{35}$ -Prozeß bei einer Deuteronenenergie von 5 bis 14 eMV einen WQ von $7 \pm 3 \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2$. Wenn der $\text{S}(\text{d}, \text{p})$ -Prozeß von dem im Vergleich mit S^{34} 270-mal selteneren S^{36} ausgehen sollte, würde sich ein unwahrscheinlich hoher WQ ergeben. Kamen ordnete deshalb den langlebigen Schwefel der Masse 35 zu.

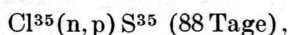
Eine ganz sichere Deutung ist möglich, wenn man Chlor von geänderter Isotopenzusammensetzung bestrahlt. Ein solcher Versuch wurde durchgeführt. Das gewöhnliche Chlor besteht aus 75% Cl^{35} und 25% Cl^{37} . Es standen 460 mg NaCl mit 48% Cl^{35} und 52% Cl^{37} zur Verfügung². Dieses Präparat wurde gleichzeitig mit 460 mg gewöhnlichem NaCl mit Neutronen bestrahlt. Die Neutronenintensität an der Stelle der beiden NaCl-Präparate war gleich. Nach der Bestrahlung wurde der gebildete aktive Schwefel nach Zugabe von inaktiver H_2SO_4 als BaSO_4 gefällt. Wenn der Schwefel aus Cl^{35} entsteht, sollte gewöhnliches NaCl einen 1,58-mal stärkeren Effekt liefern als das oben beschriebene, an Cl^{35} abgereicherte NaCl. Bei Cl^{37} als Ausgangsisotop würde das Verhältnis 0,48 betragen. Der Versuch lieferte das Verhältnis

¹ M. D. Kamen, Physic. Rev. **60**, 537 [1941].

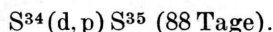
² Hrn. Prof. Clusius möchte ich auch an dieser Stelle herzlich für die Herstellung und bereitwillige Überlassung des Chlor-Präparats danken.

* Köln-Lindenthal, Lindenburg Haus 3b.

$1,48 \pm 0,1$. Das langlebige Schwefel-Isotop entsteht also sicher aus Cl^{35} durch den Prozeß



bzw. bei der Deuteronenbestrahlung von Schwefel durch den Prozeß



Die Zuordnung ist damit endgültig sichergestellt.

Um zu zeigen, daß die Umwandlung von Chlor mit thermischen Neutronen möglich ist, wurde folgender Versuch durchgeführt:

Zwei kleine, gleichgroße, mit je 3 g NH_4Cl gefüllte Behälter, von denen der eine mit Cadmium umgeben war, befanden sich im Innern eines Paraffinblocks. Ihre gegenseitige Entfernung betrug 7 cm. Das Ganze wurde mit Neutronen von $\text{Be} + \text{d}$ bestrahlt, derart, daß sich beide Kästchen in äquivalenter Stellung zur Neutronenquelle und zum Paraffin befanden. Nach der Bestrahlung wurde das gebildete S^{35} aus dem NH_4Cl als BaSO_4 abgetrennt. Die S^{35} -Präparate waren frei von P^{32} , der gleichzeitig durch die Reaktion $\text{Cl}^{35}(\text{n}, \alpha) \text{P}^{32}$ entsteht. Zur Messung der sehr weichen β -Strahlen des S^{35} von maximal 107 kV diente ein 5μ -Al-Zähler. Dieser war in ein Glasgefäß mit entsprechenden Schliffen zum Einbringen der S^{35} -Präparate eingebaut.

Der Versuch ergab, daß die S^{35} -Präparate aus dem mit Cadmium abgeschirmten NH_4Cl etwa 12-mal schwächer waren als die aus dem unabgeschirmten NH_4Cl . Kamen¹ fand, bei sicher anderer Geometrie, den Faktor 6. Die Bildung von S^{35} erfolgte in der hier gewählten Anordnung also fast ausschließlich durch thermische Neutronen. Wenn zur Bestrahlung nicht die Neutronen von $\text{Be} + \text{d}$, sondern die von $\text{Li} + \text{d}$ genommen wurden, betrug das Intensitätsverhältnis 8. Dieser — verglichen mit oben — kleinere Wert erklärt sich durch die bei Lithium-Neutronen sehr wahrscheinlich relativ stärkere Erzeugung von aktivem Schwefel durch schnelle Neutronen. Diese liefern zu beiden Präparaten einen gleichen zusätzlichen Anteil.

Der WQ der Reaktion $\text{Cl}^{35}(\text{n}, \text{p})$ für thermische Neutronen wurde durch Anschluß an den bekannten Wert für $\text{Mn}(\text{n}, \gamma)$ gemessen. Wie oben wurden zwei gleiche Mengen NH_4Cl in identischen Behältern bestrahlt, wobei der eine mit Cadmium umgeben war. Beiden NH_4Cl -Proben waren 100 mg MnCO_3 sorgfältig beigemischt worden. Dann wurde, wie oben bereits beschrieben, mit Neutronen bestrahlt. Aus der relativen Aktivität von S^{35}

und Mn^{56} ließ sich dann der gesuchte WQ berechnen. Unter der Annahme eines Absorptionsquerschnitts von $11,2 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ für $\text{Mn}(\text{n}, \gamma)$ ergab sich für die Umwandlung von reinem Cl^{35} mit thermischen Neutronen der überraschend große Wert von $0,29 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 \pm 25\%$. Für das natürliche Isotopengemisch ergibt sich ein WQ von $0,22 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$. Die Absorption der sehr weichen β -Strahlung von S^{35} in der 5μ -Al-Folie des Zählers und in der BaSO_4 -Schicht des Präparates wurde durch Versuche ermittelt und berücksichtigt.

Gibert, Roggen und Rossel³ haben die Energieverteilung der Protonen der Umwandlung $\text{Cl}^{35}(\text{n}, \text{p})$ mit Ionisationskammer und Proportionalverstärker gemessen. Aus der Protonen-Häufigkeit im Vergleich zu dem Prozeß $\text{N}^{14}(\text{n}, \text{p})$ wurde der WQ von $\text{Cl}^{35}(\text{n}, \text{p})$ erschlossen. Für den WQ für thermische Neutronen ergab sich ein 5-mal kleinerer Wert als für $\text{N}^{14}(\text{n}, \text{p})$. Wenn man für letzteren den Wert $1,2 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ annimmt, so ergibt sich danach für $\text{Cl}^{35}(\text{n}, \text{p})$ der WQ = $0,24 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$, in guter Übereinstimmung mit dem hier aus Aktivitätsmessungen ermittelten Wert. Es sei darauf hingewiesen, daß bei der Auszählung der Protonen auch ein evtl. vorhandener Prozeß $\text{Cl}^{37}(\text{n}, \text{p})$ mitgezählt würde, während bei der Aktivitätsmessung nur der Prozeß $\text{Cl}^{35}(\text{n}, \text{p})$ erfaßt wird. Offenbar spielt die Kernreaktion $\text{Cl}^{37}(\text{n}, \text{p})$ nur eine untergeordnete Rolle. Bei den hier beschriebenen Versuchen wurde die Schwefel-Aktivität über 6 Monate verfolgt. Sie fiel mit der bekannten HZ von 3 Monaten ab.

Für den Gesamtabsorptionsquerschnitt des gewöhnlichen Chlors für thermische Neutronen fanden Lapointe und Rasetti⁴ $27 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$, Volz⁵ $24 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ und Ramm $32 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$. Danach sollte er mit hier genügender Genauigkeit etwa $30 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ betragen. Er setzt sich nach bisheriger Kenntnis zusammen aus drei Teilprozessen: $\text{Cl}^{35}(\text{n}, \gamma)$, $\text{Cl}^{37}(\text{n}, \gamma)$ und dem hier beschriebenen Prozeß $\text{Cl}^{35}(\text{n}, \text{p})$. Für den Anlagerungsquerschnitt $\text{Cl}^{37}(\text{n}, \gamma)$ fanden O'Neal und Goldhaber⁶ $0,07 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ und Simna und

³ A. Gibert, I. Roggen u. I. Rossel, *Helv. physica Acta* **17**, 97 [1944].

⁴ C. Lapointe u. F. Rasetti, *Physic. Rev.* **58**, 869 [1940].

⁵ H. Volz, *Z. Physik* **121**, 201 [1943].

⁶ D. D. O'Neal u. M. Goldhaber, *Physic. Rev.* **59**, 102 [1941].

Yamasaki⁷ $0,10 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$. Alle Zahlen beziehen sich auf das natürliche Isotopengemisch von Chlor. Der Teilquerschnitt von $\text{Cl}^{35}(\text{n}, \gamma)$ sollte danach $30 - (0,22 + 0,10) \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$, d. h. rund $30 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ betragen. Eine direkte Messung wie bei $\text{Cl}^{37}(\text{n}, \gamma)$ liegt nicht vor, da über ein aktives Chlor der Masse 36 nichts bekannt ist.

Der bei der Anlagerung eines thermischen Neutrons an Cl^{35} gebildete, angeregte Cl^{36} -Kern kann also in zwei Richtungen zerfallen: einmal durch Emission eines γ -Quants mit einem WQ von rd. $30 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$, oder durch Emission eines Protons mit einem WQ von $0,29 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$. Die Emission eines γ -Quants ist also rd. 100-mal wahrscheinlicher als die eines Protons. Für dieses Proton beträgt die Durchdringungswahrscheinlichkeit durch den Potentialberg von Chlor nach Gamov etwa 10^{-4} . Da bei der Maximalenergie die Laufzeit des Protons durch den Cl-Kern etwa 10^{-20} sec beträgt, sollte die HZ für *alleinigen* Protonenzerfall, in Abwesenheit eines konkurrierenden Prozesses, etwa 10^{-16} sec betragen. Dabei ist noch nicht berücksichtigt, daß ein einzelnes Proton nur während eines kleinen Zeitbruchteils die gesamte Anregungsenergie des Cl^{36} auf sich vereinigt. Die HZ für Protonenzerfall ist also sicher wesentlich größer. Nun muß bei alleinigem γ -Zerfall des angeregten Cl^{36} eine HZ von etwa 10^{-16} sec angenommen werden. Da nach obigem die Protonenemission 100-mal seltener ist als die γ -Emission, so wäre bei alleinigem Protonenzerfall eine HZ von etwa 10^{-14} sec zu erwarten. Dieser Wert ist rd. 100-mal größer als der, der sich aus dem Gamov-Faktor für ein Proton maximaler Energie ergibt. Für die Wahrscheinlichkeit dafür, daß ein einzelnes Proton die gesamte Anregungsenergie auf sich vereinigt, ergäbe sich damit ein Wert

von 10^{-2} , was durchaus verständlich erscheint. Von Weißkopf und Ewing sind diese Verhältnisse näher durchgerechnet worden. Ihre Ergebnisse sind aber auf einen so leichten Kern wie Cl nicht mehr anwendbar.

Immer dann, wenn die maximale β -Energie eines Elektronenstrahlers kleiner ist als die Differenz der Neutronen-Protonenmasse, sollte er durch einen (n,p)-Prozeß mit *thermischen* Neutronen entstehen können. Der einzige weitere bekannte Fall dieser Art ist der Prozeß $\text{Zn}^{64}(\text{n}, \text{p}) \text{Cu}^{64}$ (12,8 Stdn.). Da die maximale β -Energie von $\text{Cu}^{64} = 580 \text{ kV}$ ist, sollten die Protonen eine Energie von: Neutronenmasse — Protonenmasse — $580 \text{ kV} = 180 \text{ kV}$ haben. Für die Durchdringungswahrscheinlichkeit dieser Protonen durch den Potentialberg von Zn^{65} ergibt sich ein Wert von rd. 10^{-16} , für alleinigen Protonenzerfall des angeregten Zn^{65} also eine HZ von rd. 10^{-5} sec . Für die Laufzeit des Protons im Kern wurde dabei ein Wert von 10^{-21} sec benutzt. Die Protonenemission sollte also 10^{11} -mal seltener sein als die γ -Emission. Mit einem WQ des Zn für thermische Neutronen von maximal 10^{-24} cm^2 ist für $\text{Zn}(\text{n}, \text{p})$ ein WQ von maximal 10^{-35} cm^2 zu erwarten. Ein Versuch ergab als obere Grenze einen Wert von 10^{-29} cm^2 , was obiger Überlegung entspricht.

Um einen Begriff von den erreichbaren Präparatstärken von S^{35} zu geben, sei angegeben, daß man bei Bestrahlung von 1 kg Ammoniumchlorid mit thermischen Neutronen von 1 kg (Ra + Be)-Äquivalent in 1 Stde. etwa 1 μ Curie erhält.

⁷ K. Simna u. F. Yamasaki, Physic. Rev. **59**, 402 [1941].

⁸ S. Flüggé u. J. Mattauich, Kernphysikalische Tabellen, Springer-Verlag, 1942.