

Aus dem II. Physikalischen Institut der Universität Göttingen

Verzweigungsverhältnisse von Ag^{110} ($T_{\frac{1}{2}} = 24,4 \text{ sec}$)

Von

L. FREVERT, P. H. HECKMANN und A. FLAMMERSFELD

Mit 2 Figuren im Text

(Eingegangen am 30. April 1963)

The branching ratios of 24 sec Ag^{110} have been measured with scintillation spectrometers. A new upper limit of 0.9% is given for decay by K -electron capture.

1. Einleitung

Das radioaktive Silberisotop Ag^{110} besitzt einen isomeren Zustand, der mit einer Halbwertszeit von 249 Tagen¹ in angeregte Niveaus des Cd^{110} und zu 5 % in den Grundzustand des Ag^{110} zerfällt, der seinerseits mit einer Halbwertszeit von 24,4 sec² durch β -Strahlung zum Cd^{110} zerfällt (s. Fig. 2).

Bei den meisten bisher vorliegenden Messungen des Zerfalls des 24 sec-Grundzustandes^{3–9} wurde die 249-Tage-Aktivität als Muttersubstanz benutzt; demzufolge sind zwar die Zerfallsenergien recht genau bekannt, doch konnten die Häufigkeiten der β -Übergänge nur ungenau ermittelt werden. Ziel dieser Arbeit sollte deshalb sein, die Verzweigungsverhältnisse am Zerfall des 24 sec-Grundzustandes direkt zu messen.

Dabei mußte auch die Möglichkeit in Betracht gezogen werden, daß der 24 sec-Grundzustand partiell durch Elektroneneinfang in Pd^{110} zerfällt. Aus den von HALSTED¹⁰ massenspektrographisch ermittelten Massen von Pd^{110} und Cd^{110} folgt unter Berücksichtigung der β -Zerfallsenergie⁸ des Ag^{110} eine Massendifferenz $\text{Ag}^{110} - \text{Pd}^{110}$ von $(1860 \pm 180) \text{ keV}/c^2$; KÖNIG, MATTAUCH und WAPSTRA¹¹ geben in ihren Massentabellen eine Massendifferenz von $(1450 \pm 310) \text{ keV}/c^2$ an.

¹ NILSSON, R.: Nuclear Phys. **29**, 66 (1962).

² MALMSKOG, S., and J. KONIJN: Nuclear Phys. **38**, 196 (1962).

³ SIEGBAHN, K.: Phys. Rev. **77**, 233 (1950).

⁴ GOODRICH, M.: Phys. Rev. **82**, 759 (1951).

⁵ BOLEY, F. I.: Phys. Rev. **94**, 1078 (1954).

⁶ DZHELEPOV, B. S., and N. N. ZHUKOVSKY: Nuclear Phys. **6**, 655 (1958).

⁷ ANTON'eva, N. M., A. A. BASHILOV i E. K. KULAKOVSKII: Zhur. Eksp. i Teoret. Fiz. **37**, 1497 (1959).

⁸ KATO, T., and Y. YOSHIZAWA: Nuclear Phys. **32**, 5 (1962).

⁹ DANIEL, H., O. MEHLING u. D. SCHOTTE: Z. Physik **172**, 202 (1963).

¹⁰ HALSTED, P. R.: Phys. Rev. **88**, 666 (1952).

¹¹ KÖNIG, L. A., J. H. E. MATTAUCH and A. H. WAPSTRA: Nuclear Phys. **31**, 1 (1962).

Die Spins und Paritäten $1+$ und $0+$ der Grundzustände von Ag^{110} bzw. Pd^{110} lassen einen erlaubten Übergang erwarten, der in der Größenordnung von etwa 1% aller Zerfälle stattfinden sollte. Die bisher bekannte obere Grenze für den Einfangprozeß beträgt 20%¹². Es sollte daher hier auch nach K -Einfang gesucht werden.

2. Herstellung der Präparate

Als Präparate wurden Silberfolien verschiedener Dicke und natürlicher Isotopenzusammensetzung verwendet. Sie wurden aktiviert mit Neutronen aus der $\text{Be}^9(d,n)$ -Reaktion ($E_d = 1$ MeV), die durch Paraffin abgebremst wurden. Der Fluß an thermischen Neutronen betrug etwa 10^8 n/cm² sec. Die Bestrahlungszeit betrug höchstens 20 sec. Bei den Bestrahlungen entstanden außer Ag^{110} auch Ag^{108} ($T_{\frac{1}{2}} = 2,42$ min)¹³, Ag^{107m} ($T_{\frac{1}{2}} = 44$ sec) und Ag^{109m} ($T_{\frac{1}{2}} = 40$ sec)¹⁴; die langlebigen Aktivitäten des Ag^{110m} und des Ag^{108m} wurden nicht in meßbarem Maße erzeugt.

Nach jeder Bestrahlung wurden die Präparate mit Hilfe einer Transportvorrichtung innerhalb einiger Sekunden in die Nachweisapparatur gebracht und zunächst bis höchstens 60 sec nach Bestrahlungsende gemessen. Zur Korrektur auf die Störaktivitäten wurden weitere Messungen in späteren Meßintervallen benutzt: Ag^{107m} und Ag^{109m} störten nur bei der Untersuchung der K -Röntgenstrahlung, da sie durch stark konvertierte Übergänge in die Grundzustände zerfallen¹⁴, und wurden dort eliminiert durch Messungen von 70 sec bis 130 sec nach jeder Bestrahlung; Ag^{108} wurde eliminiert auf Grund von Messungen von 150 sec bis 450 sec nach jeder Bestrahlung.

3. Häufigkeit der β^- -Partialspektren des Ag^{110}

Beim Zerfall des Ag^{110} waren bisher zwei β^- -Partialspektren gut bekannt: der Zerfall zum Cd^{110} -Grundniveau, β_1 , mit einer Maximalenergie von 2,87 MeV⁸, und β_2 mit 2,18 MeV Maximalenergie⁸ zum 658 keV-Niveau im Cd^{110} . Ein dritter, schwacher Übergang β_3 mit etwa 1,4 MeV Maximalenergie ist von verschiedenen Autoren^{8,9,15} gefunden worden, jedoch war nicht eindeutig geklärt, ob es sich dabei um einen Zerfall von Ag^{110} oder Ag^{110m} handelt.

Um diese Frage zu klären, wurde zunächst das γ -Spektrum des Ag^{110} gemessen. Hierzu wurde ein NaJ-Lochkristall von 10,2 cm Höhe und 10,2 cm Durchmesser benutzt, dessen Loch bei 17 mm Durchmesser

¹² JAFFE, H.: University of California Radiation Laboratory Report UCRL-2537 (1954) (unpublished).

¹³ WAHLGREN, M. A., and W. W. MEINKE: Phys. Rev. **118**, 181 (1960).

¹⁴ LANDOLT-BÖRNSTEIN, Neue Serie, Gruppe 1, Bd. 1. Berlin 1961.

¹⁵ ANTON'eva, N. M., A. A. BASHILOV i B. S. DZHELEPOV: Doklady Akad. Nauk S.S.S.R. **77**, 41 (1951).

68 mm tief war. Die Präparate befanden sich bei diesen Messungen im Loch des Kristalles, umgeben von einem Aluminiumzylinder von 5 mm Wand- und Bodenstärke, der zur Absorption der β -Teilchen diente. Die Impulse des Photomultipliers wurden mit einem 256-Kanaldiskriminator analysiert. Die Ansprechwahrscheinlichkeiten des Kristalles waren nach der von WÄCHTER u. Mitarb.¹⁶ angegebenen Methode berechnet und mit nach SCHMIDT-OTT¹⁷ bestimmten Werten verglichen worden.

Fig. 1 zeigt eines der gemessenen γ -Spektren. Neben der starken 658 keV-Linie als Folge des Überganges β_2 ist noch eine schwache Linie bei 1020 keV zu erkennen, die vom Zerfall von Ag^{108} herrührt, wie die Messungen von 150 bis 450 sec nach jeder Bestrahlung ergaben. Eine weitere, sehrschwache Linie befindet sich bei (1480 ± 30) keV; eine Andeutung einer Linie bei 1300 keV dürfte der Summierung zweier zufällig gleichzeitiger 658 keV-Quanten zuzuschreiben sein.

Die bei 1480 keV gefundene γ -Linie entsteht offenbar durch den Zerfall des

1474 keV-Niveaus des Cd^{110} , das durch den Übergang β_3 erreicht wird. Wie aus Messungen am $\text{Ag}^{110\text{m}}$ bekannt ist, zerfällt dieses 1474 keV-Niveau zu 40 % direkt in den Grundzustand, zu 60 % über eine 815 bis 658 keV-Kaskade^{6,7}. Die 1480 keV-Linie in den hier gemessenen Spektren entsteht teilweise durch Summation der 815 keV- und 658 keV-Strahlung; die 815 keV-Einzellinie konnte in den gemessenen Spektren wegen des hohen Untergrundes an Bremsstrahlung nicht gefunden werden. Aus dem Verhältnis der Flächen unter der 1480 keV-Linie und der 658 keV-Linie wurde das Verhältnis $\beta_3:\beta_2 = (0,0117 \pm 0,0026)$ bestimmt.

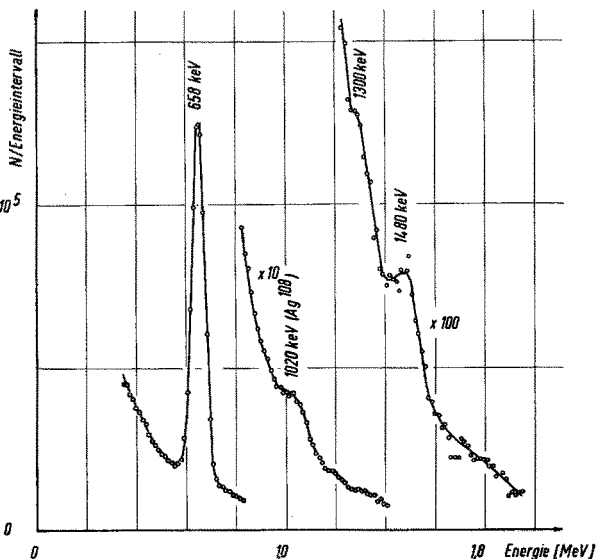


Fig. 1. γ -Spektrum des Ag^{110} , gemessen mit einem $10,2 \text{ cm} \times 10,2 \text{ cm}$ NaJ-Lochkristall, Präparat im Loch. Die 1020 keV-Linie rührt her von mitaktiviertem Ag^{108}

¹⁶ WÄCHTER, M.H., W.H. ELLET and G.L. BROWNELL: Rev. Sci. Instr. **31**, 628 (1960).

¹⁷ SCHMIDT-OTT, W.-D.: Z. Physik **154**, 294 (1959).

Das Verhältnis $\beta_2:\beta_1$ wurde ermittelt, indem gleichzeitig die β -Teilchen und die γ -Quanten jeweils in 4π -Geometrie gezählt wurden. Die dazu benutzte Versuchsanordnung ist bereits an anderer Stelle genau beschrieben worden¹⁸: Das Präparat — zwei Silberschichten von $3\text{ mm} \times 18\text{ mm}$ und 11 mg/cm^2 Dicke — befand sich in zwei Längsschnitten eines Plastiksintillators von 10 mm Durchmesser und 23 mm Höhe, der auf einen Lichtleiter aufgekittet war. Diese Anordnung wurde in den NaJ-Lochkristall geschoben, wobei ein Kupferzylinder von 0,8 mm Wand- und Bodenstärke verhinderte, daß energiereiche β -Teilchen in den NaJ-Kristall gelangten; die Absorption dieses Zylinders für 658 keV- γ -Strahlung war mit einem Cs¹³⁷-Präparat gemessen worden ($E_\gamma = 662\text{ keV}$). Bei der Aktivierung wurden Plastiksintillator und Plexiglaslichtleiter mitbestrahlt; Blindversuche hatten ergeben, daß die dadurch entstehende Störaktivität kleiner war als 0,1 % der zu messenden Aktivitäten.

Das γ -Spektrum wurde mit einem 256-Kanaldiskriminator registriert, die Multiplierimpulse des β -Zweiges mit einem schnellen Zähler gezählt, nachdem die Rauschimpulse mit einem Integralkriminator abgeschnitten waren. Die gemessenen Teilchenzahlen wurden auf die Totzeiten der Elektronik hin korrigiert.

Es wurde außerdem das γ -Spektrum in Koinzidenz mit den gezählten β -Teilchen gemessen; hierzu diente eine konventionelle Schnell-Langsam-Koinzidenz. Die Koinzidenzmessungen ermöglichten es, die Zahl der energiearmen, im β -Zähler nicht registrierten β -Teilchen zu ermitteln, deren zugehörige Multiplierimpulse mit dem Rauschen wegdiskriminiert worden waren. Bei einer solchen Koinzidenzmessung finden sich im γ -Spektrum nur die 658 keV-Quanten, die zu wirklich gezählten β -Teilchen aus dem β_2 -Spektrum gehören (die 658 keV- γ -Quanten infolge des β_3 -Zerfalles können hier wegen ihrer geringen Häufigkeit vernachlässigt werden), während bei der Messung ohne Koinzidenz die Zahl der 658 keV-Quanten alle erfolgten β_2 -Zerfälle angibt. Ein Vergleich der Messungen in Koinzidenz und ohne Koinzidenz ermöglicht es also, den Anteil der β -Teilchen aus dem β_2 -Übergang zu ermitteln, die im β -Zähler nicht registriert worden waren. Durch Vergleich mit dem mit Hilfe der Fermi-Funktion¹⁹ berechneten theoretischen Verlauf des β_2 -Spektrums konnte daraus die Mindestenergie der β -Teilchen ermittelt werden, die zu ihrer Registrierung im β -Zähler notwendig war. Mit der gleichen Abschneideenergie wurden sodann die Zählverluste im β_1 -Spektrum aus dessen berechnetem Verlauf bestimmt. Sie betrugen bei beiden Spektren weniger als 8 %.

Als Mittelwert aus drei Meßreihen ergab sich für das Intensitätsverhältnis $\beta_2:\beta_1 = (0,0465 \pm 0,0025)$.

¹⁸ FREVERT, L.: Z. Physik **169**, 456 (1962).

¹⁹ ROSE, M.E., N.M. DISMUKE, N.L. PERRY and P.R. BELL: ORNL Report No. 1222.

4. Suche nach K -Einfang beim Ag^{110}

Die Wahrscheinlichkeit des Zerfalls von Ag^{110} durch Elektroneneinfang sollte bestimmt werden durch Messung der durch K -Einfang entstehenden K -Röntgenstrahlung des Pd^{110} . Hierzu diente ein NaJ-Kristall von 5,1 cm Durchmesser und 5,1 cm Höhe, dessen Endfläche durch eine Aluminiumfolie von 25 μ Dicke bedeckt war. Die Präparate — quadratische Silberfolien von 15 mm \times 15 mm — befanden sich in 12 mm Abstand von der Endfläche des Kristalls auf einem Beryllium-Absorber von 5 mm Dicke, der zur Abbremsung der β -Teilchen diente. Die Nachweiswahrscheinlichkeiten des Kristalls für diese Anordnung waren auf Grund früherer Messungen am Ag^{108} bekannt¹⁸. Zwischen Multiplier und 256-Kanaldiskriminator befand sich bei diesen Messungen ein stark nichtlinearer Verstärker, der die zur K -Röntgenstrahlung gehörenden Impulse etwa 15mal mehr verstärkte als die der 658 keV-Linie. Dadurch wurde die K -Röntgenlinie zu höheren Kanalpositionen hin verschoben und so Zählverluste vermieden, die bei hohen Zählraten in den unteren Kanälen des 256-Kanaldiskriminators entstehen können.

Bei den Messungen trat neben der K -Röntgenstrahlung des Pd^{108} aus dem Zerfall des Ag^{108} , die leicht abgezogen werden konnte, noch K -Röntgenstrahlung von Silber auf, die teilweise durch K -Ionisation durch β -Teilchen in der Silberfolie entstand, und teilweise auf den Zerfall von Ag^{107m} und Ag^{109m} zurückzuführen war, die durch schnelle Neutronen angeregt wurden. Durch Einschalten von 5 cm Paraffin zwischen Präparat und Neutronenquelle konnte die störende K -Röntgenstrahlung von Ag^{107m} und Ag^{109m} auf etwa 0,2% der gesamten Anfangsaktivität des Ag^{110} herabgedrückt werden. In den gemessenen Spektren konnten die K -Röntgenlinien von Ag und Pd wegen des begrenzten Auflösungsvermögens des NaJ-Kristalls in diesem Energiebereich nicht getrennt werden.

Der Anteil der auf β -Strahlen zurückzuführenden K -Röntgenstrahlung wurde bestimmt, indem die Zahl der K -Quanten relativ zur Zahl der 658 keV-Quanten in Abhängigkeit von der Schichtdicke der Silberpräparate gemessen wurde. Hierzu wurden Schichtdicken von 2, 5, 11 und 20 mg/cm² benutzt. Dünnere Schichten als 2 mg/cm² konnten aus Intensitätsgründen nicht benutzt werden. Es wurden drei Meßreihen durchgeführt, die nach Berücksichtigung der Selbstabsorption der Röntgenstrahlung in den Präparaten einen linearen Zusammenhang zwischen der Zahl der K -Quanten und der Schichtdicke ergaben. Bei der Schicht von 11 mg/cm² wurde durch β -Teilchen in etwa 0,7% aller Zerfälle K -Röntgenstrahlung erzeugt.

Bei den endgültigen Messungen wurde nach der Bestrahlung in drei aufeinanderfolgenden Zeitintervallen gemessen, wie oben bereits beschrieben. Mit Hilfe der drei Meßintervalle konnten die Aktivitäten von

Ag^{110} , $\text{Ag}^{107\text{m}}$ + $\text{Ag}^{109\text{m}}$ und Ag^{108} getrennt werden. Dabei wurde für die Strahlung von $\text{Ag}^{107\text{m}}$ und $\text{Ag}^{109\text{m}}$ eine mittlere Halbwertszeit von 42 sec angesetzt.

Es wurde je eine Meßreihe mit Silberschichten von 11 mg/cm² und 2 mg/cm² durchgeführt. Bei beiden Meßreihen ergab sich nach Abziehen der K -Strahlung aus den Störeffekten ein Rest von K -Strahlung, der auf einen K -Einfang beim Ag^{110} hindeutet; da jedoch die Störeffekte in der gleichen Größenordnung lagen wie die hier anscheinend gefundene K -Strahlung vom Elektroneneinfang beim Ag^{110} , erscheint die Existenz dieses Einfangprozesses aus den hier vorliegenden Experimenten nicht genügend gesichert. Sie ergeben jedoch — unter Berücksichtigung der K -Fluoreszenzsausbeute von Pd $\omega_K = 0,81$ ²⁰ — eine obere Grenze für die Häufigkeit des Elektroneneinfanges von Ag^{110} : K -Elektroneneinfang findet in weniger als 0,9% aller Zerfälle statt. Die Suche nach dem K -Einfang beim Ag^{110} soll mit anderen Meßmethoden fortgesetzt werden.

5. Ergebnisse und Diskussion

Die Ergebnisse der Messungen sind in der Tabelle, das Niveauschema in Fig. 2 dargestellt.

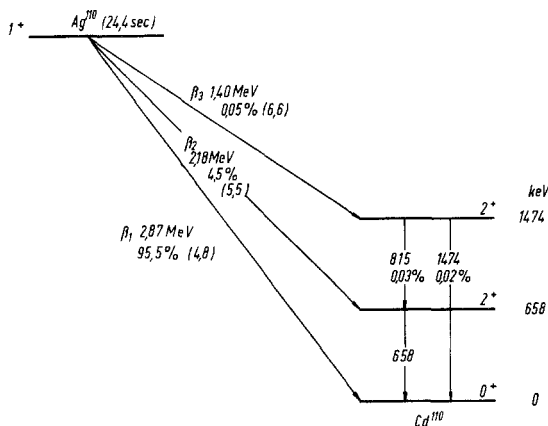


Fig. 2. Niveauschema für den Zerfall von Ag^{110} .
Eingeklammert: $\log ft$ -Werte

Tabelle. Relative Zerfallswahrscheinlichkeiten und $\log ft$ -Werte für den Zerfall des Ag^{110}

Energie und Übergang	Relative Zerfallswahrscheinlichkeit in %	$\log ft$
β_1^- : 2,87 MeV	$95,51 \pm 0,25$	4,8
β_2^- : 2,18 MeV	$4,45 \pm 0,24$	5,5
β_3^- : 1,40 MeV	$0,052 \pm 0,012$	6,6
K -Einfang	$< 0,9$	

Die hier bestimmte relative Häufigkeit des 1,4 MeV- β^- -Partialspektrums des Ag^{110} ist bedeutend niedriger als die von anderen Autoren^{8,9} aus dem β -Spektrum von $\text{Ag}^{110\text{m}}$

bestimmte Häufigkeit einer 1,4 MeV- β -Gruppe; der überwiegende Teil dieser β -Gruppe muß daher einem direkten Übergang des $\text{Ag}^{110\text{m}}$ zu einem angeregten Niveau des Cd^{110} entsprechen, wie von DANIEL u. Mitarb.⁹ auch angegeben worden ist.

²⁰ HAGEDORN, H.L., and A.H. WAPSTRA: Nuclear Phys. **15**, 146 (1960).