

Mitteilungen aus dem Institut für Radiumforschung
Nr. 198

Untersuchungen über das Eindringen des Poloniums in Metalle

Von

Elisabeth Rona und Ewald A. W. Schmidt

(Mit 3 Textfiguren)

(Vorgelegt in der Sitzung am 10. Februar 1927)

Den Anstoß zur vorliegenden Arbeit haben Beobachtungen gegeben, die bei der Benützung von Polonium als α -Strahler für die Versuche über künstliche Atomzertrümmerung in Wien¹ gemacht worden sind. Seitdem nachgewiesen ist,² daß α -Strahlen dieser Energie zertrümmernd wirken können, werden zu den erwähnten Versuchen, soweit als angängig, Poloniumstrahlungsquellen verwendet, die gegenüber anderen den Vorteil besitzen, keine störende β - oder γ -Strahlung zu liefern und an Intensität während der in Betracht kommenden Zeit praktisch konstant zu bleiben. Gewisse Erfahrungen mit sehr hochkonzentrierten Poloniumpräparaten haben nun jedoch auf eine Veränderung an Reichweite eines Teiles der ausgesendeten α -Teilchen hingedeutet, ein Effekt, der dadurch erklärt werden kann, daß das Polonium in die Metallunterlage, auf der es meist elektrolytisch aufgetragen ist, eindringt. Ist diese Erscheinung allgemein, so wäre damit das Arbeiten mit Polonium als Strahlungsquelle einigermaßen kompliziert, da stets eine genaue Feststellung der Reichweiteverteilung unter den ausgesandten α -Teilchen den quantitativen Zertrümmerungsversuchen vorangehen müßte. Eine solche Feststellung ist aber kaum in allen Fällen mit genügender Genauigkeit durchführbar.

Es ist außerdem zu erwähnen, daß die nicht unerheblichen Schwankungen in der Bestimmung des Wertes der Zerfallskonstanten von Polonium ebenfalls zur Erwägung Veranlassung gegeben haben, in einer verhältnismäßig raschen Diffusion des verwendeten Poloniums in seine metallischen Unterlagen für diese Tatsache eine Erklärung zu suchen.³ Auf die Untersuchungen von

¹ H. Pettersson und G. Kirsch, Atomzertrümmerung. Akad. Verlagsges. Leipzig 1926.

E. A. W. Schmidt, Mitt. d. Ra.-Inst. Nr. 178, 1925, diese Berichte, 134, 385, 1925.

Vgl. St. Meyer und E. Schweidler, Radioaktivität bei B. G. Teubner. Leipzig, I. Aufl., 1916, p. 362, II. Aufl., 1927, p. 454, sowie die dort angeführte Literatur.

Stéphanie Maracineanu¹ werden wir später noch eingehend zurückkommen müssen.

Zweck der vorliegenden Untersuchung war es, nachzuweisen, in welchem Ausmaße und in welche Metallunterlagen eine solche erhöhte Eindringung des Poloniums erfolgt, die für den erwähnten störenden Effekt verantwortlich zu machen wäre.

Die bekannte Erscheinung der Eindringung radioaktiver Substanzen in ihre Unterlage durch Rückstoß, hervorgerufen durch den Zerfall der Muttersubstanz oder (wie E. Dorn² nach Versuchen von O. Demmler an Polonium nachwies) benachbarter Teilchen, kann keine Rolle spielen. Wie die Untersuchungen von L. Wertenstein³ und von E. Rie⁴ gezeigt haben, beträgt die mittlere Eindringungstiefe in diesen Fällen nur etwa 10 bis 20 $\mu\mu$, ein Wert, der zwei bis drei Größenordnungen unter dem hier in Betracht kommenden liegt.

Zur Frage der Diffusion des Poloniums in feste Metalle liegen Versuche von J. Gróh und G. v. Hevesy⁵ und G. v. Hevesy und A. Obrutshewa⁶ vor. Die erstgenannten Autoren gingen so vor, daß in einem Röhrchen inaktives und mit Radium *D* versetztes Blei in geschmolzenem Zustande übereinander gelagert und die so zusammengesetzte Säule im Vakuum durch 400 Tage dauernd auf 280° C gehalten wurde. Die Prüfung des vordem inaktiven Teiles der Säule auf ein Vordringen der Aktivität fiel negativ aus. Hevesy und Obrutshewa haben dann durch Szintillationsbeobachtungen die Diffusion von Polonium selbst in Blei bei hohen Temperaturen verfolgt und gelangten zur Feststellung einer Diffusionskonstanten von $1.3 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{Tag}$ bei 310° C.

Versuchsordnung.

Wir haben als Unterlagematerial für das Polonium möglichst homogene Metallfolien von 2 bis 13 μ Stärke gewählt (nur im Falle des Bleies betrug die Dicke der Folien 100 μ). Untersucht wurden die folgenden Metalle: Aluminium, Eisen, Nickel, Kupfer, Silber, Gold und Blei. Wo solche zur Verfügung standen — im Falle von Gold und Nickel — wurden Folien von C. Müller,

Stéphanie Maracineanu, C. R. 176, 1879, 1923, *ibid.* 177, 1215, 1923.
 „ 181, 774, 1925.
 183, 345, 1925.

Recherches sur la constante du Polonium etc.,
 Paris, Les Presses Universitaires de France 1924.

E. Dorn, Mitt. Nat. Ges. Halle 1912, II.

L. Wertenstein, Théses 1913.

E. Rie, Mitt. a. d. Ra.-Inst. Nr. 141, diese Ber. 130, 283, 1921.

⁵ J. Gróh und G. Hevesy, Ann. d. Phys. 65, 216, 1921.

G. Hevesy und A. Obrutshewa, Nature. 115, 624, 1924.

Berlin verwendet, die sich durch besondere Homogenität und Lochfreiheit auszeichnen.

Zum Nachweis der Eindringung des Poloniums in die Metallunterlagen wurde die Szintillationsmethode gewählt, die für diesen Zweck weitaus am empfindlichsten erscheint. Er geschah in der Weise, daß die Metallfolien mit Polonium einseitig aktiviert und hierauf die die Folien durchdringende α -Strahlung untersucht wurde. Dabei mußte streng darauf geachtet werden, daß die sorgfältig gereinigten Folien auf der zu aktivierenden Seite nicht irgendwelchen zerstörenden Einflüssen durch Säurewirkung und dergleichen ausgesetzt werden und andererseits die Rückseite der Folien völlig unversehrt von radioaktiven Substanzen erhalten bleibt. Das Verfahren, welches zur Herstellung derartiger Präparate am geeignetsten erschien, ist das der Destillation des Poloniums. Wir haben eine große Reihe von Versuchen unternommen, um die Faktoren, die bei dieser Methode eine Rolle spielen, genau zu untersuchen und sie quantitativ auszugestalten. Über diese Versuche soll in einer besonderen Abhandlung eingehend berichtet werden. Hier möge nur an Hand der Fig. 1 die für den vorliegenden Fall gewählte Anordnung kurz skizziert werden.

S ist ein Doppelhohlkonus aus Glas mit einer Gesamthöhe von 40 mm und einer lichten Weite an der engsten Stelle von 10 mm. In diesen ist einerseits ein Glasrohr R eingeschliffen, in dem an der engsten Stelle, ebenfalls eingeschliffen, ein Rohr G zentrisch sitzt. Platineinsmelzungen im Rohre R ermöglichen eine leitende Verbindung mit den beiden Platinstiften P herzustellen, die in G eingeschmolzen sind. In der oberen Öffnung ist ein Metallkonus M eingesetzt. Die Anbringung der zu aktivierenden Folien zeigt die Detailskizze Fig. 2.

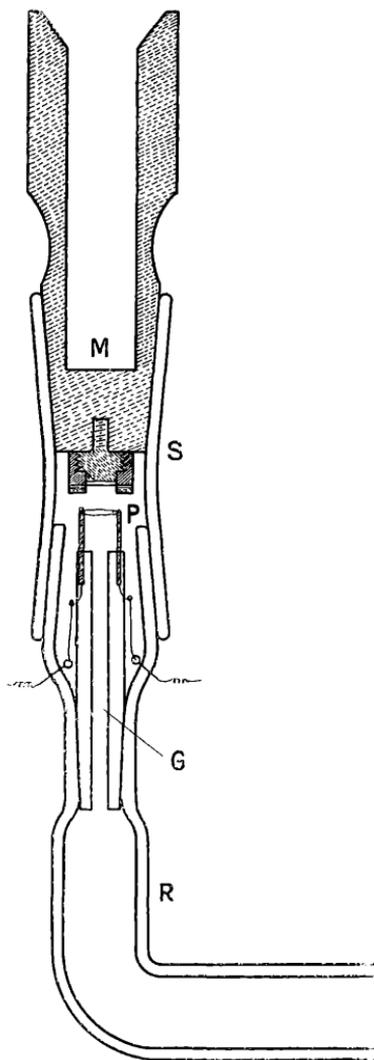


Fig. 1.

Die Folien werden über die Öffnung der Kapsel *K* gespannt und mit einem 0·5 *mm* starken Messingrähmchen dicht festgekittet. Die Kapsel besteht aus einer Schraubenmutter, die so ausgestattet ist, daß die sie ausfüllende Doppelschraube *A* $1\frac{1}{4}$ *mm* von der oberen Mündung, also von der Folie entfernt bleibt. Mit dieser Doppelschraube wird dann die Kapsel am Konus *M* befestigt. Auf solche Weise ist es erstens möglich, auch die empfindlichen Müllerfolien unbeschädigt in den Apparat einzubringen und zweitens die Rückseite der Folien völlig frei von Verseuchung mit Polonium zu erhalten.

Das zu destillierende Polonium wird zunächst elektrolytisch auf einem 0·04 *mm* starken Platinfaden niedergeschlagen und dieser sodann ein- bis zweimal zwischen den beiden Platinstiften *P* festgeklemmt. Die Möglichkeit, das Rohr *G* aus dem Schliff herauszuheben, erleichtert die Anbringung des Platinfadens und die Reinigung nach erfolgter Destillation. Der Abstand der Platinfäden

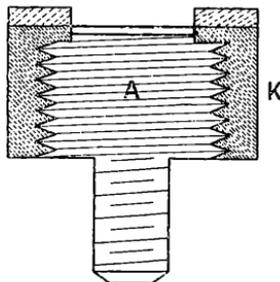


Fig.

von der Folie betrug meist 2 *mm*. Die Fäden werden nach Montierung des Apparates einige Sekunden durch den elektrischen Strom auf helle Rotglut erhitzt. In Fällen, für die, wie bei den vorliegenden Versuchen, nur schwache Präparate von 0·5 bis 2 elektrostatischen Einheiten erwünscht sind, genügt dieses Verfahren vollkommen. Zur Herstellung von stärkeren Präparaten auf dünne Folien mit besserer Ausbeute ist die Rohrleitung *R—G* vorgesehen, durch die während der Erhitzung ein langsamer Wasserstoffstrom geleitet wird, der durch Rillen im Kupferkonus *M* austretend, mit Polonium beladen an der Folie vorbeistreicht. Da in diesem Falle auch eine länger dauernde Erhitzung nötig wird, ist in *M* eine Höhlung angebracht, die mit CO_2 -Schnee gefüllt, zur Verbesserung der Kühlung dient.

Nach erfolgter Destillation wird unter Ausblendung der Messingteile die Aktivität der Folien im Plattenkondensator bestimmt und die Kapseln so aufbewahrt, daß die beiden Seiten der Folien sich in getrenntem Luftraume befinden.

Die zum Nachweis der Eindringung verwendete Meßanordnung zeigt Fig. 3.

Sie besteht aus einer flachen Messingdose, in deren rundem Boden zentrisch über einem 8 *mm* weiten Loch der ZnS-Schirm *Z* festgekittet sitzt. Über diesen, durch Schlitze *S* mit Einschnappvorrichtungen bewegbar, spielen zwei Fächer *F* aus Messingblech mit Löchern, über welche je drei Glimmerblätter verschiedenen Absorptionsvermögens angebracht sind. Außerdem ist in jedem Fächer ein Loch freigelassen. In dem aufschraubbaren Deckel der Dose ist ein Rohrstück *R* eingesetzt, auf das die Kapseln mit den aktivierten Folien geschraubt werden, so daß der inaktive Teil derselben gegen den Schirm gerichtet ist. Die Absorption im Wege der Teilchen konnte durch die Glimmer in Stufen von 2 bis 4 *mm* Luftäquivalent in dem in Betracht kommenden Bereiche erhöht werden. Eine sehr hohe Absorption ermöglichte Prüfung auf

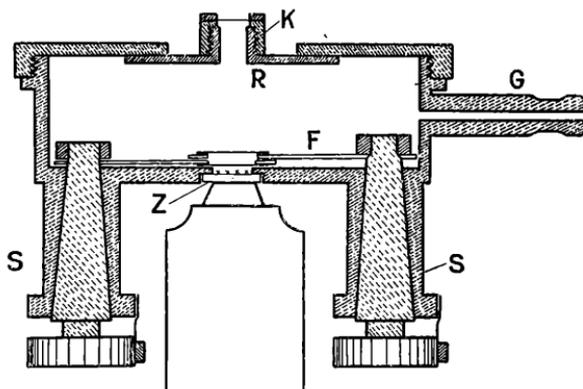


Fig. 3.

Schirmverseuchung. Seitlich ist an der Dose ein Gasrohr *G* angebracht, um den Apparat zur Verfeinerung der Absorptionsmessung evakuieren zu können.

Die Folien wurden stets, bevor sie in Verwendung kamen, mit einem α -Strahlenbündel von Thorium *C*, an Zahl der ausgesandten Teilchen der später aufgetragenen Poloniummenge vergleichbar, sorgfältig auf Lochfreiheit und Homogenität geprüft und ihr Absorptionsvermögen für α -Teilchen bestimmt. Es betrug mit Ausnahme des Falles von Blei 0.6 bis 4.5 *cm* Luftäquivalent. Die Prüfung ergab eine zwar nicht vollständige, aber für unsere Zwecke genügende Gleichmäßigkeit.

Die Prüfung im Szintillationsapparat gleich nach erfolgter Aktivierung ergab bei Al, Ni und Au, wo eine solche Feststellung durch Polonium- α -Teilchen möglich war, genaue Übereinstimmung in der Reichweite der die Folien durchsetzenden Teilchen mit dem Aichwerte. Die Zahl der Szintillationen, herrührend von Verseuchungsspuren und den wenigen Löchern in den Folien, betrug in keinem Falle mehr als fünf bis sechs in der Minute, bei einem

Abstand Schirm-Folie von 16 *mm* und einer Gesichtsfeldgröße von 11 *mm*². Ein Wachsen der kleinen Zahl der Teilchen, welche die sehr seltenen dünnen Stellen der Folien durchsetzen, sollte vor allem im Falle der stärkeren Folien als erstes Anzeichen eines Vordringens des Poloniums wahrgenommen werden. Zur Beobachtung wurde das beste bei den Atomzertrümmerungsversuchen benützte Mikroskop (Watson II¹) verwendet, so daß α -Teilchen auch in den letzten Millimetern ihrer Reichweite gesehen werden konnten. Die Messungen wurden anfangs alle fünf bis sieben Tage, später in längeren Zeitintervallen vorgenommen und erstrecken sich insgesamt über sieben Monate.

Dabei sind wir so vorgegangen, daß zunächst auf eine bestimmte Absorptionsstufe eingestellt und bei Steigerung der Absorption um wenige Millimeter von einem oder zwei gut adaptierten Beobachtern auf das Anwachsen an Teilchenzahl hin beobachtet wurde. Das Abbrechen der Hauptmenge der α -Teilchen war in den in Betracht kommenden Fällen scharf beobachtbar. Bei den stärkeren Folien hätte sich, wie erwähnt, eine Eindringung durch Vermehrung der die spärlichen dünnen Stellen durchdringenden Teilchen bemerkbar gemacht. Bei keinem der untersuchten Metalle konnte aber ein Anzeichen für eine Vergrößerung der ursprünglichen Reichweite der α -Teilchen auch nur um wenige Millimeter gefunden werden, bei den dünnen Folien um 1 bis 2 *mm* entsprechend einer Schichtdicke der Metalle von 1 bis 3 μ .

Eine Poloniummenge von 10^{-13} g ist mit unserer Methode noch sicher nachweisbar. Wäre diese Poloniummenge während der Beobachtungszeit um mehr als 1 μ von der aktivierten Fläche in das Metall vorgedrungen, so würde dies bei Annahme gleichförmiger Verteilung des Poloniums über die aktivierte Fläche einen Diffusionskoeffizienten $D = 10^{-14}$ *cm*²/Tag ergeben. Dieser Wert stellt die obere Grenze für den Diffusionskoeffizienten dar, wie er sich aus unseren Versuchen ergibt.

Dieses Ergebnis zeigt also, daß bei keinem der von uns untersuchten Metalle und unter den beobachteten Bedingungen (Zimmertemperatur) eine Diffusion des Poloniums in das Metall selbst mit einer Geschwindigkeit stattfindet, die das für die gegenseitige Diffusion von festen Körpern bisher festgestellte Maß überschreitet. Die anfangs erwähnten, hier gemachten Erfahrungen, welche auf eine Reichweiteveränderung der α -Strahlen von mit Polonium bedeckten Metallscheibchen hinzudeuten schienen, verlangen also nach einer anderen Erklärung. Diese dürfte darin zu suchen sein, daß die erwähnten Präparate wegen ihrer viel höheren Intensität (mehr als 500 elektrostatische Einheiten pro Quadratmillimeter) und ihrer Darstellungsweise mit einer Oxydschicht bedeckt sind, die dem Polonium günstigere Bedingungen zum Eindringen bietet als das blanke Metall. Daraus ergeben sich

¹ L.

die methodisch wichtigen Schlußfolgerungen, daß erstens eine Darstellungsweise der Poloniumpräparate vorteilhafter ist, welche die Bildung einer Oxydschichte möglichst vermeidet, worauf wir in einem anderen Zusammenhange zurückkommen werden; zweitens, daß Poloniumpräparate, die eine solche Oxydschichte zeigen, vorteilhaft von Zeit zu Zeit einer Umarbeitung zu unterwerfen sind.

Bemerkungen über das Verhalten von Polonium auf Blei im Zusammenhang mit den Untersuchungen von Stéphanie Maracineanu.

Das Resultat des Versuches mit Blei ist von besonderem Interesse. Die eingangs zitierten Arbeiten von Gróh, Hevesy und Obrutsheva¹ verfolgen allerdings nur die Diffusion bei Temperaturen um 300° C. Der hiebei gefundene sehr kleine Wert für die Diffusionskonstante steht jedoch in guter Übereinstimmung mit dem Verhalten des Poloniums gegenüber Blei in den von uns gemachten Beobachtungen. Dagegen haben die ebenfalls schon erwähnten Versuche von Stéphanie Maracineanu² nach deren Auffassung zu ganz eigenartigen Ergebnissen geführt. Der von der Verfasserin beobachtete Vorgang ist folgender: ca. 10 bis 12 cm^2 große Stücke von $\frac{1}{10}$ bis $\frac{2}{10}$ mm starkem Bleiblech werden auf Strahlungsfreiheit geprüft, hierauf wird in der Mitte der Folien je ein Tropfen einer salzsauren Poloniumlösung angebracht, einige Minuten stehen gelassen und sodann abgesaugt. Es bleibt eine Poloniummenge von wenigen elektrostatischen Einheiten zurück. Die Folien werden nun auf etwas größere inaktive Bleifolien derselben Art mit der aktivierten Seite nach unten aufgelegt und die überragenden Ränder der inaktiven Folien um die aktivierte herumgefaltet. Dieses Bleipaket wird nun in ein Szilárd'sches Elektrometer eingebracht. Dabei zeigte sich schon einige Minuten nach Fertigstellung der Präparate ein stets wachsender Ionisationseffekt, der durch mehrere Monate anfangs schnell, später langsam anstieg; wurde das Bleipaket zuvor einer Erhitzung auf über 100° C ausgesetzt, so erfolgte der Anstieg der Ionisationswirkung bedeutend rascher.

Die Verfasserin schloß zunächst auf eine schnelle Diffusion des Poloniums in Blei, gelangte aber nach weiteren Versuchen zu der Annahme, daß es sich um eine Anregung (excitation) des Bleies unter α -Strahlenwirkung handle.³ Durch diese soll im Blei Radium *D* gebildet werden, dessen Folgeprodukt RaE der Ionisationseffekt zu verdanken ist. Während die nach der Szintillationsmethode

L.

L. c.

Nach mündlichen Mitteilungen der Verfasserin.

beobachtete α -Strahlung dem nachgebildeten Polonium entstammen sollte.¹

Wir haben mit dem gleichen Bleimaterial, das der einen von uns freundlichst zur Verfügung gestellt worden war, diese Versuche unter Einhaltung des gleichen Vorganges wiederholt. Die Bleipakete zeigten vor der Aktivierung keine α -Aktivität, mit dem Szintillationsschirm sorgfältig untersucht, während eine etwa vorhandene von β -Strahlung herrührende Ionisation 10^{-1} elektrostatische Einheiten nicht übersteigen konnte. Nach erfolgter Aktivierung war tatsächlich sofort ein ansteigender Ionisationseffekt meßbar, der von der Menge des aufgetragenen Poloniums abhing und im Falle eines durch 30 Minuten auf 120° C gehaltenen Bleipaketes das Zehnfache betrug (nach zwei Tagen 10^{-2} elektrostatische Einheiten). Die Prüfung der Aktivität erfolgte dabei nach der Szintillationsmethode und durch Messung in einem Wulfelektrometer mit Topfanordnung, wo auch die von β -Strahlung herrührende Ionisation nach Absorption der α -Strahlung gemessen wurde. Sie zeigte, daß gleich zu Beginn der Hauptteil der Ionisation der α -Wirkung zu verdanken ist. Nur ein geringer Bruchteil rührt von β -Strahlung her und steigt in kontinuierlichem Verhältnis mit wachsender α -Wirkung an. Das Konstantbleiben dieses Verhältnisses macht die letzte Deutung, die Maracineanu ihren Versuchen gab, wenig wahrscheinlich. Darnach wäre erst eine allmähliche Herstellung des Gleichgewichtes zwischen den radioaktiven Substanzen auf der Rückseite der Folien zu erwarten. Es scheint vielmehr ein kontinuierliches Wandern des Poloniums auf die nichtaktivierte Seite der Folie stattzufinden. Die β -Wirkung erklärt sich dabei in unserem Falle durch eine geringe Beimengung von Radium *D* zu dem verwendeten Polonium.

Wie beschrieben, hat der Versuch mit dem nach der Destillationsmethode aktivierten Blei, das aus derselben Folie bestand, in der Anordnung Fig. 3 bei gleicher Stärke des Poloniumpräparates keinen derartigen Effekt gezeigt. Es schien damit die Ansicht von einer Erregung des Bleies völlig hinfällig und wir schlossen, daß wohl eine Einwirkung des Säuregehaltes des Tropfens, mit dem aktiviert wird, auf die Folie die ganze Erscheinung hervorruft, so zwar, daß eine teilweise Perforierung der Folie eintritt, die dem Polonium das Vordringen im Blei ermöglicht. Wir haben deshalb eine zweite Kapsel mit derselben Bleifolie versehen, die Aktivierung diesmal aber nach der Tropfmethode vorgenommen. Die Oberfläche des Bleis zeigt sich zwar angegriffen, doch konnte auch nach mehreren Wochen keine Spur einer Aktivität auf der Rückseite nachgewiesen werden. Die von St. Maracineanu beobachtete Erscheinung beruht daher unseres Erachtens im Falle des Poloniums

¹ Untersuchungen mit Sonnenbestrahlung scheinen in jüngster Zeit weiterhin die Verfasserin der Annahme einer Rückbildung von Radium *E* aus Radium *F* geneigt zu machen.

auf einem oberflächlichen Überkriechen desselben, das durch Kittflächen, wie sie bei unserer Anordnung das Präparat ringförmig umschließen, unterbunden wird. Die Versuche der Verfasserin, den Einwand des Überkriechens zu entkräften, scheinen nicht stichhaltig, da die verwendete photographische Methode viel zu unempfindlich ist. Dagegen sprechen die Resultate, welche die Verfasserin mit Glas, Gold und anderen Metalloberflächen erhielt und die quantitativ eine weitgehende Ähnlichkeit mit den Bleiversuchen aufwiesen, gegen eine Sonderstellung des Bleies und sehr für unsere Auffassung. Möglicherweise handelt es sich hier um eine besondere Löslichkeit des Poloniums in der Bleioberfläche, wie eine solche für andere Stoffe an Flüssigkeitsoberflächen beobachtet wurde. Eine Untersuchung der Poloniumausbreitung auf anderen Metalloberflächen ist geplant.

Zusammenfassung.

Zur Aufklärung von in Wien gemachten Beobachtungen an starken Poloniumpräparaten werden Versuche zur Feststellung einer erhöhten Diffusion von Polonium in metallischen Unterlagen angestellt.

Eine Methode zur einseitigen Aktivierung der verwendeten dünnen Metallfolien wird beschrieben.

Zur Aufsuchung eines Eindringungseffektes wird die Szintillationsmethode angewendet.

Die Versuche zeigen, daß bei keinem der untersuchten Metalle, nämlich Aluminium, Eisen, Nickel, Kupfer, Silber, Gold und Blei innerhalb der Versuchsfehler eine abnorm hohe Diffusionsgeschwindigkeit auftritt.

Die Beobachtungen über das Verhalten von Polonium auf Blei widersprechen dem von St. Maracineanu in den letzten Jahren auf Grund ihrer Versuche gemachten Annahmen und führen zu der Auffassung, daß durch ein Wandern des Poloniums auf der Bleioberfläche die gesamten gemachten Beobachtungen zu erklären sind.

ZOBODAT - www.zobodat.at

Zoologisch-Botanische Datenbank/Zoological-Botanical Database

Digitale Literatur/Digital Literature

Zeitschrift/Journal: [Sitzungsberichte der Akademie der Wissenschaften mathematisch-naturwissenschaftliche Klasse](#)

Jahr/Year: 1927

Band/Volume: [136_2a](#)

Autor(en)/Author(s): Rona Elisabeth, Schmidt Ewald A. W.

Artikel/Article: [Mitteilungen aus dem Institut für Radiumforschung Nr. 198. Untersuchungen über das Eindringen des Poloniums in Metalle. 65-73](#)