

Si<sup>29</sup>(n, $\alpha$ )Mg<sup>26</sup> führt dagegen zu Energien 14,1 und 12,2 MeV. Diese sind größer als die maximal in der Reaktion Si<sup>28</sup>(n, $\alpha$ )Mg<sup>25</sup> auftretende Energie von 11,4 MeV und sollten daher noch zu registrieren sein. Deshalb wurde nochmals das  $\alpha$ -Spektrum im Zähler registriert, diesmal aber bis zu 14,5 MeV Teilchenenergie (Abb. 2). Die oben in das Spektrum eingezeichneten Pfeile bezeichnen wiederum mögliche Übergänge zu Niveaus im Mg<sup>25</sup> aus der Reaktion Si<sup>28</sup>(n, $\alpha$ )Mg<sup>25</sup>, die unten eingezeichneten Pfeile bezeichnen solche Übergänge zu Niveaus im Mg<sup>26</sup> (siehe Anm. <sup>2</sup>) aus der Reaktion Si<sup>29</sup>(n, $\alpha$ )Mg<sup>26</sup>. Der Übergang zum Grundzustand und ersten angeregten Zustand von Mg<sup>26</sup> ist hier gut zu erkennen. Für die relativen Wirkungsquerschnitte ergibt sich daraus für den Übergang zum Grundzustand

$$\frac{\sigma_{\text{Si}^{28}(\text{n}, \alpha) \text{Mg}^{25}}}{\sigma_{\text{Si}^{29}(\text{n}, \alpha) \text{Mg}^{26}}} = 8,5 \pm 15\%.$$

Es sei noch darauf hingewiesen, daß der Untergrund aus der Reaktion Si<sup>29</sup>(n, $\alpha$ )Mg<sup>26</sup> im Spektrum Si<sup>28</sup>(n, $\alpha$ )Mg<sup>25</sup> trotz der geringen Isotopenhäufigkeit besonders im Bereich niedrigerer Teilchenenergien nicht zu vernachlässigen ist. Hier ist bei gleicher Teilchenenergie die Niveaudichte im Mg<sup>26</sup>-Folgekern der Reaktion Si<sup>29</sup>(n, $\alpha$ )Mg<sup>26</sup> bereits wesentlich größer als die im Mg<sup>25</sup>-Folgekern der Reaktion Si<sup>28</sup>(n, $\alpha$ )Mg<sup>25</sup>.

Die begonnenen Arbeiten sollen ausgedehnt werden auf Neutronenenergien bis 19,6 MeV. Außerdem wird versucht, sowohl die Neutronenenergieauflösung als auch die Auflösung des Halbleiterzählers wesentlich zu verbessern.

Herrn Prof. Dr. H. NEUERT danke ich für die Anregung zu dieser Arbeit. Für die Überlassung des Silicium-Halbleiterzählers bin ich Herrn Dr. H. J. STUCKENBERG vom Deutschen Elektronen-Synchrotron, Hamburg, zu Dank verpflichtet.

## Niederenergetische $\gamma$ -Strahlung beim Einfang thermischer Neutronen in Rhodium\*

Von GERD BUSCHHORN

Aus dem Laboratorium für Technische Physik der Technischen Hochschule München

(Z. Naturforschg. **17 a**, 241—248 [1962]; eingegangen am 19. Januar 1962)

The low-energetic capture  $\gamma$ -ray spectrum of Rh<sup>104</sup> was investigated by means of a 4.6 m-bent-crystal spectrometer in DuMond-arrangement. For 39  $\gamma$ -rays in the range from 20 to 400 keV, the energies and absolute intensities (relative to 100 neutron captures) were determined. An improved intensity calibration of the spectrometer showed the energy-dependence of the integrated reflection coefficient for the (101)-planes of the 3 mm thick quartz-crystal in the second diffraction order to be  $E^{-1.025 \pm 0.03}$  in the energy range from 100 to 470 keV.

Decay-time measurements showed that besides the well known 51.4 keV-E1- $\gamma$ -transition, a second transition with 97.1 keV also decays with the Rh<sup>104m</sup> half-life of 4.4 min. This 97.1 keV- $\gamma$ -ray corresponds to the transition from the second excited Rh<sup>104</sup>-level to the ground state. Several Ritz-combinations confirm this conclusion and improve the low-energy level-scheme of Rh<sup>104</sup>.

In der vorliegenden Arbeit werden die von SCHULT<sup>1-3</sup> begonnenen Untersuchungen der beim Einfang langsamer Neutronen entstehenden niederenergetischen  $\gamma$ -Strahlung fortgeführt. Es wurde Rhodium untersucht, das in seiner natürlichen Form nur aus dem Isotop Rh<sup>103</sup> besteht, aus dem durch Neutroneneinfang der u-u-Kern Rh<sup>104</sup> gebildet wird.

Bei den u-u-Kernen sind komplizierte  $\gamma$ -Spektren zu erwarten, deren Verständnis i. allg. große Schwierigkeiten bereitet. Die Ordnungszahl von

Rhodium ist mit  $Z=45$  aber noch relativ niedrig, so daß man mit einer noch nicht allzu großen Niveaudichte rechnen kann. Der Einfangquerschnitt von Rhodium für langsame Neutronen ist mit 156 barn für die experimentelle Untersuchung günstig hoch. Besonderes Interesse bietet die Existenz eines Isomers (Rh<sup>104m</sup>; 4,4 min). Man wird außerdem erwarten dürfen, daß die Untersuchung der Reaktion Rh<sup>103</sup>(d,p)Rh<sup>104</sup> Energiewerte für die Terme von Rh<sup>104</sup> liefert, die zwar nicht sehr genau sein können, die Einordnung von  $\gamma$ -Linien aber doch erleichtern.

\* Dissertationsauszug, Techn. Hochsch. München 1961.

<sup>1</sup> O. SCHULT, Z. Phys. **158**, 444 [1960]; Kerntechnik **2**, 223 [1960].

<sup>2</sup> O. SCHULT, Z. Naturforschg. **16 a**, 927 [1961].

<sup>3</sup> J. T. WASSON, Z. Naturforschg. **15 a**, 276 [1960].



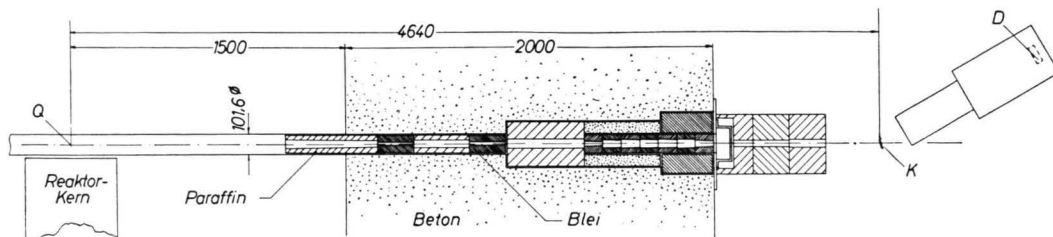


Abb. 1. Anordnung des  $\gamma$ -Spektrometers am durchgehenden Strahlrohr des FRM-Reaktors. Die  $\gamma$ -Quelle befindet sich bei Q, der Quarzkristall bei K, D=Detektor, Luftdruck im Strahlrohr ca. 0,5 Torr.

Bei unseren Messungen wurde außer der genauen Bestimmung von  $\gamma$ -Energien (bis 400 keV) besonderer Wert auf die Intensitätsmessung (Zahl der pro 100 Neutroneneinfänge ausgesandten Quanten der einzelnen  $\gamma$ -Übergänge) gelegt. Es besteht die Hoffnung, diese Werte durch genaue Intensitätsmessungen der entsprechenden Konversionselektronen mittels der Methode von v. EGIDY<sup>4</sup> ergänzen zu können. Damit würden sich als weitere Hilfsmittel für das Verständnis des Spektrums Gesamtintensitäten und Multipolordnungen der  $\gamma$ -Übergänge ergeben.

### I. Versuchsanordnung

Für die Messungen wurde das  $\gamma$ -Spektrometer mit gebogenem Quarzkristall verwendet, das am durchgehenden Strahlrohr des FRM-Reaktors (Forschungsreaktor des Laboratoriums für Technische Physik der Technischen Hochschule München) aufgestellt ist und schon an anderer Stelle eingehend beschrieben wurde (s. Anm. 1), so daß hier auf Einzelheiten verzichtet werden kann.

Die Meßgenauigkeit des Spektrometers wurde in der Zwischenzeit erhöht, indem der anfänglich für die Messung der Reflexionswinkel verwendete Theodolit T 2 der Firma Wild, Herbrugg-Schweiz (Teilkreisgenauigkeit  $1,3'' = 0,4''$ ) durch den Theodolit T 4 der gleichen Firma (Teilkreisgenauigkeit  $0,1''$ ) ersetzt wurde.

Die  $\gamma$ -Quelle befindet sich in der Mitte des durchgehenden Strahlrohres des FRM-Reaktors ca. 10 cm neben dem Reaktorkern. Ihre Größe und Form sind dadurch bestimmt, daß einerseits auf Grund des relativ niedrigen thermischen Neutronenflusses meist nur kleine spezifische Aktivitäten erreichbar sind, also ein möglichst großes effektives Quellvolumen erwünscht ist, andererseits aber das Auflösungsvermögen mit zunehmender Quellbreite abnimmt und die Quelltiefe durch die  $\gamma$ -Absorption begrenzt ist. Da sich rechteckige Quellen nur sehr schwer in der Mitte des 7 m langen Strahl-

rohres genau parallel zu dessen Achse einjustieren lassen, wurden für die Intensitätsmessungen zylindrische Quellen mit 0,3 mm  $\phi$  und 10 mm Höhe verwendet, die hinsichtlich ihrer  $\gamma$ -Absorption vernünftig korrigierbar sind. Im Hinblick auf eine günstige Gestaltung des Verhältnisses von Linienhöhe zu Untergrund hat man für eine sorgfältige Abschirmung aller vom Kern kommenden und an der Strahlrohrwand, der Quellhalterung und der Quelle selbst gestreuten  $\gamma$ - und Neutronenstrahlung zu sorgen. Das geschieht durch ein System von eng ausgelegten Blei- und Paraffinblenden, das gegenüber der früheren Anordnung besonders hinsichtlich der Abschirmung schneller Neutronen verbessert wurde (s. Abb. 1).

Die Bestimmung der Absolutintensitäten der Eingang- $\gamma$ -Linien machte eine genaue Messung des thermischen und schnellen Neutronenflusses im Strahlrohr notwendig. Auf Grund der relativ schlechten Reproduzierbarkeit der Reaktorleistung wurde die Flußmessung während der Intensitätsmessung einer Bezugslinie des Rhodiumspektrums durchgeführt. Als Flußsonde wurde ein dünner Golddraht von ca. 4,5 cm Ringdurchmesser bei 0,1 mm Drahtdurchmesser verwendet, der senkrecht zur Strahlrohrachse so aufgehängt war, daß sich die Rhodiumquelle in seinem Mittelpunkt befand.

Die Aktivität der Flußsonde wurde nach einem bei WOLF<sup>5</sup> beschriebenen Verfahren mittels der  $4\pi\beta-\gamma$ -Koinzidenzmethode bestimmt. Mit der Korrektur der Neutronen-Selbstabsorption nach Angaben bei HOHMANN et al.<sup>6</sup> unter der Annahme vorwiegend einseitig senkrechter Neutroneneinwirkung (evakuiertes Strahlrohr) ergab sich ein über 400 min gemittelter thermischer Neutronenfluß von  $(1,84 \pm 0,40) \cdot 10^{12}$  Neutr./cm<sup>2</sup> sec. Mit dem gemessenen Cadmium-Verhältnis von 5,73 erhält man daraus bei Berücksichtigung der Korrektur für Resonanzselbstabsorption nach Angaben bei MÄNNER und SPRINGER<sup>7</sup> einen Resonanzfluß von  $(5,33 \pm 0,40) \cdot 10^{10}$  Neutr./cm<sup>2</sup> sec.

Monitormessungen zeigten, daß die Reaktorleistung kurzzeitige Schwankungen mit der Dauer einiger Minuten von höchstens einigen Prozent aufweist, während sie im Mittel über mehrere Stunden auf etwa 1% konstant bleibt.

<sup>4</sup> T. v. EGIDY, in Vorbereitung.

<sup>5</sup> G. WOLF, Nukleonik 2, 255 [1961].

<sup>6</sup> H. HOHMANN, R. MISENTA, M. POLLERMANN, T. SPRINGER u. H. WALTHER, Nukleonik 1, 149 [1958].

<sup>7</sup> W. MÄNNER u. T. SPRINGER, Nukleonik 1, 337 [1959].

## II. Eichung des Spektrometers

### 1. Energieeichung

Eine genaue Untersuchung des Einflusses der Justierung auf die Absolutgenauigkeit der Energiemessung zeigt (s. Anm. <sup>1</sup>), daß sich Abweichungen von der exakten Position und Orientierung des Quarzkristalls in erster Näherung wie eine scheinbare Änderung der Gitterkonstanten auswirken. Justierfehler dieser Art lassen sich also durch eine Eichung der Gitterkonstanten mit genau bekannten RÖNTGEN- oder  $\gamma$ -Linien eliminieren. Für ihre Neubestimmung nach den oben erwähnten Umbauten wurden die sehr genauen Werte der  $K_{\alpha 1}$ - und  $K_{\alpha 2}$ -RÖNTGEN-Wellenlängen von Gadolinium von BERGVALL <sup>8</sup> verwendet, mit denen sich als neuer Wert der Gitterkonstanten der (101)-Ebenen von Quarz ( $3336,32 \pm 1 \cdot 10^{-5}$ ) XU ergab.

### 2. Intensitätseichung

Die Absolutintensitäten von RÖNTGEN- und  $\gamma$ -Übergängen können aus den Flächen ihrer Reflexe bestimmt werden, da das integrale Reflexionsvermögen des Kristalls, das durch

$$R_{\theta} = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{I(\varphi - \varphi_B)}{I_0} d\varphi$$

definiert ist <sup>9</sup> [ $I(\varphi - \varphi_B)/I_0$  ist das sog. „diffraction pattern“ des gebogenen Kristalls,  $\varphi_B$  der BRAGG-Winkel,  $I_0$  die Intensität des einfallenden Strahls], im wesentlichen nur von der  $\gamma$ -Energie, nicht aber von den Fokussierungseigenschaften des Kristalls oder der Form der Strahlenquelle abhängt. Nur bei kleinen Reflexionswinkeln, bei denen sich die geometrischen Verhältnisse noch nicht ändern (in unserem Fall  $4^\circ$ , s. Anm. <sup>1</sup>), ist das Reflexhöhenverhältnis ein Maß für das Intensitätsverhältnis. Die Intensitäten von RÖNTGEN- und  $\gamma$ -Linien können auf Grund ihrer sehr verschiedenen natürlichen Halbwertsbreite ausschließlich über die Reflexflächen miteinander verglichen werden <sup>10</sup>.

Wegen der sehr kleinen Nachweiswahrscheinlichkeit des Spektrometers ( $10^{-7} - 10^{-8}$ ) kommt für den direkten Vergleich der integralen Reflexintensität mit der mittels einer  $\beta - \gamma$ -Koinzidenzmessung bestimmten Absolutaktivität der Quelle nur der beim  $\beta$ -Zerfall von Au<sup>198</sup> auftretende 411,8 keV-Übergang in Frage. Deshalb wurden alle in die Nachweiswahrscheinlichkeit des Spektrometers eingehenden energieabhängigen Größen rechnerisch oder experimentell einzeln bestimmt und mittels einer Au<sup>198</sup>-Koinzidenzeichnung auf den effektiven Raumwinkel normiert. Diese Koinzidenzeichnung ist insofern von großer Bedeutung, als sich der tatsächliche Raumwinkel nicht mit genügender Genauigkeit berechnen läßt, da besonders die Strahlrohrblen-

den und der Plattenkollimator, aber auch die Ausrichtung des Spektrometers erhebliche Unsicherheiten ergeben.

Bei dem hier vorliegenden Fall sehr guter Geometrie kann die totale Nachweiswahrscheinlichkeit des  $1\frac{1}{2}'' \phi \times \frac{1}{2}''$ -NaJ(Tl)-Detektors nach der Beziehung

$$W = 1 - e^{-\mu l}$$

berechnet werden. Wegen der Energieabhängigkeit des Detektor-Auflösungsvermögens ist es vorteilhaft, die Fläche des Photopeaks an Stelle seiner Höhe im Maximum als Intensitätsmaß zu verwenden, wobei aber das sog. „photopeak-to-total“-Verhältnis neben der Energie auch noch von der Geometrie abhängt und meist nur ungenau berechnet werden kann. Es wurde deshalb mit dem  $\gamma$ -Spektrometer als Monochromator für folgende Energien experimentell ermittelt: 103,2 keV (Sm<sup>153</sup>); 121,8 keV (Eu<sup>152</sup>); 208,4 keV (Lu<sup>177</sup>); 316,5 keV (Ir<sup>192</sup>); 411,8 keV (Au<sup>198</sup>); 468,1 keV (Ir<sup>192</sup>). Der sogen. „escape“-Anteil wurde für die 51,4 keV- und 97,1 keV-Linie von Rh<sup>104</sup> bestimmt.

Die Messung des Reflexionskoeffizienten des Quarzkristalls erfolgte nach einer schon von LIND angegebenen Methode <sup>11</sup>, der sich später auch fast alle anderen Autoren bedient haben (SCHULT, s. Anm. <sup>1</sup>, HATCH <sup>12</sup>, SUMBAEV <sup>13</sup>, BERGVALL <sup>14</sup>). Aus den angeführten Gründen wurden aber an Stelle der Reflexhöhen die Reflexflächen ausgemessen. Die Meßergebnisse für die obigen  $\gamma$ -Linien in II. Beugungsordnung zeigt Abb. 2.

Der durch Ausgleichsrechnung ermittelte Exponent der Energie beträgt  $-(1,025 \pm 0,03)$ . Der Fehler wurde

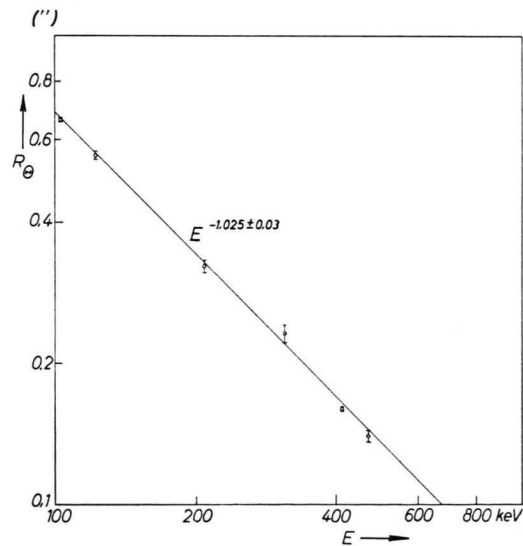


Abb. 2. Integrales Reflexionsvermögen der (101)-Ebene von Quarz in II. Beugungsordnung ( $R_{\theta}$  in Winkelsekunden).

<sup>8</sup> P. BERGVALL, Ark. Fys. 16, 57 [1959].

<sup>9</sup> W. ZACHARIASEN, Theory of X-Ray-Diffraction in Crystals, John Wiley & Sons, New York 1945.

<sup>10</sup> W. F. EDWARDS, Thesis, Calif. Inst. Technol., Pasadena 1960.

<sup>11</sup> D. A. LIND, Thesis, Calif. Inst. Technol., Pasadena 1948.

<sup>12</sup> E. N. HATCH, Thesis, Calif. Inst. Technol., Pasadena 1956.

<sup>13</sup> O. I. SUMBAEV, J. Exp. Theor. Phys., USSR 5, 170 [1957].

<sup>14</sup> P. BERGVALL, Ark. Fys. 17, 125 [1960].

aus dem mittleren Schwankungsquadrat bestimmt und ist im wesentlichen durch die Unsicherheit im Abschneiden des Photopeaks im Spektrum des ungebeugten Strahls bedingt. Änderungen im Verhalten des Reflexionsvermögens sind nur für größere  $\gamma$ -Energien und höhere Beugungsordnungen zu erwarten (siehe Anm. <sup>1</sup> und <sup>9</sup>).

Die Au<sup>198</sup>-Koinzidenzzeichnung ergibt bei Berücksichtigung der Absorption und Detektor-Nachweiswahrscheinlichkeit einen effektiven Raumwinkel  $\Omega_{\text{eff}}/4\pi$  von  $(5,12 \pm 0,18) \cdot 10^{-7}$ , das sind nur 72% des idealen Wertes von  $7,10 \cdot 10^{-7}$ . Eine vor der Eichung beim schrittweisen Einbau der Strahlrohrblenden durchgeführte Messung des Intensitätsabfalls im Primärstrahl zeigte aber, daß durch sie mindestens 20% der Primärintensität absorbiert werden (der Beitrag der innersten Blende konnte aus Untergrundsschwierigkeiten nicht bestimmt werden).

Abb. 3 zeigt die Energieabhängigkeit der auf den effektiven Raumwinkel normierten integralen Nachweiswahrscheinlichkeit des Spektrometers für die Detektor-Nachweiswahrscheinlichkeit 1 (Kurve a) und für den verwendeten  $1\frac{1}{2}'' \phi \times \frac{1}{2}''$ -NaJ(Tl)-Detektorkristall.

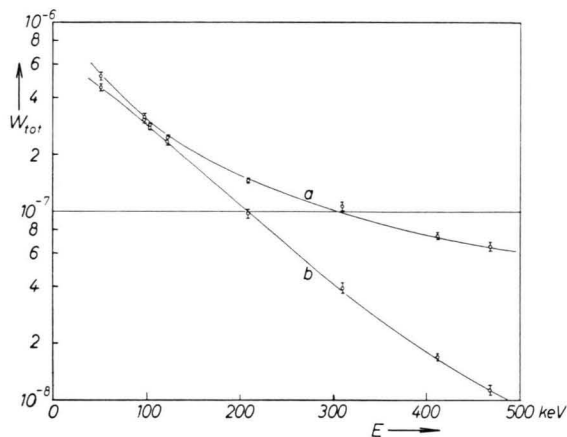


Abb. 3. Integrale Nachweiswahrscheinlichkeit des Spektrometers für die Detektor-Nachweiswahrscheinlichkeit 1 (Kurve a) und einen  $1\frac{1}{2}'' \phi \times \frac{1}{2}''$ -NaJ(Tl)-Kristall (Kurve b). ( $W_{\text{tot}}$  in Winkelsekunden.)

### III. Meßergebnisse

#### 1. Energien und Intensitäten der Einfang- $\gamma$ -Linien von Rh<sup>104</sup>

Durch Neutroneneinfang in natürlichem Rhodium wird nur das Isotop Rh<sup>104</sup> gebildet. Die Zuordnung der  $\gamma$ -Linien ist also eindeutig, da auch beim  $\beta$ -Zerfall von Rh<sup>104</sup> in den g – g-Kern Pd<sup>104</sup> keine störenden niederenergetischen  $\gamma$ -Linien mit hinreichender Intensität entstehen.

Die Untersuchungen wurden in zwei Abschnitten mit verschiedenen Quellen durchgeführt. Für die

Messung der  $\gamma$ -Energien wurde eine Quelle verwendet, die aus Metallpulver (99,99% Reinheit) in einer 0,03 mm dicken Al-Folie auf die Form  $12 \times 3 \times 0,3$  mm<sup>3</sup> gepreßt worden war. Bei einer solchen Quelle ist aber weder die Tiefe sehr genau definiert, noch das Material sehr homogen, so daß man mit einem Fehler der Selbstabsorptionskorrektur von mindestens 20% zu rechnen hat. Für die Intensitätsmessungen wurde deshalb ein 10 mm langes Stück gezogener Rhodiumdraht mit 0,30 mm  $\phi$  (chemisch rein) als Quelle verwendet. Alle im Energiebereich von 20 keV bis 400 keV beobachteten  $\gamma$ -Linien sind in Tab. 1 angegeben.

$E$ keV	$\Delta E$ eV	$I_{\text{abs}}$ pro 100 Einf.	$\Delta I_{\text{abs}}$
51,4225	1,5	15,58	1,21
80,7234	5,7	0,61	0,05
83,7285	6,3	0,87	0,08
85,3552	3,3	2,65	0,20
97,1137	2,8	22,10	1,6
100,7965	4,7	5,40	0,39
118,2070	11,8	0,55	0,05
127,3180	7,7	5,69	0,42
129,438	15	0,33	0,03
131,899	15	0,45	0,04
134,6171	7,6	6,63	0,47
135,229	18	1,25	0,09
138,681	16	0,61	0,04
157,073	20	1,35	0,10
161,636	22	1,26	0,10
165,300	26	1,23	0,09
169,402	24	3,81	0,30
170,337	24	0,79	0,07
177,881	28	2,53	0,18
178,836	26	4,07	0,30
180,859	14	25,64	1,82
186,045	28	1,72	0,12
196,509	81	0,36	0,04
196,812	116	0,36	0,04
197,881	46	0,36	0,04
200,834	40	0,85	0,17
202,832	40	1,92	0,15
213,098	48	1,97	0,15
215,489	38	5,50	0,41
217,915	43	7,24	0,52
234,118	43	0,66	0,06
235,829	43	0,52	0,05
237,181	43	0,52	0,05
261,033	57	0,55	0,05
261,672	57	0,92	0,08
266,750	21	2,69	0,22
269,040	40	1,85	0,15
273,510	56	1,00	0,09
333,557	30	3,08	0,27

Tab. 1. Niederenergetisches Einfang- $\gamma$ -Spektrum von Rh<sup>104</sup>.

Die Absolutintensitäten der  $\gamma$ -Linien wurden ermittelt, indem aus der integralen Intensität der 97,1 keV-Linie in II. Ordnung über die Zahl der pro

Sekunde in der Quelle stattfindenden Neutroneneinfänge ihre Absolutintensität berechnet wurde, so daß sich die Absolutintensitäten der übrigen Linien aus deren relativen Intensitäten in bezug auf die 97,1 keV-Linie ergaben.

Mit Rücksicht auf die Selbstabsorptionskorrektur wurden fast alle relativen Intensitäten aus den Reflexhöhen der zylindrischen Quelle ermittelt, nur in einigen Fällen sehr schwacher höherenergetischer Linien mußten Messungen von der rechteckigen Quelle verwendet werden. Es wurden dann aber nur verhältnismäßig eng benachbarte Linien miteinander verglichen, so daß die Ungenauigkeit der Selbstabsorptionskorrektur nicht ins Gewicht fiel. Die Meßdauer wurde so groß gewählt, daß sich die oben erwähnten kurzperiodischen Leistungsschwankungen des Reaktors herausmittelten. Langzeitige Schwankungen des Reaktors wurden durch öfters wiederholte Vergleichsmessungen der 97,1 keV-Bezugslinie ermittelt und korrigiert.

Die untere Grenze der  $\gamma$ -Absolutintensität bei der unter den vorliegenden Verhältnissen (Rhodium-Quelle) eine  $\gamma$ -Linie noch gefunden werden kann, ist in Abb. 4 in Abhängigkeit von der  $\gamma$ -Energie dargestellt. Diese Grenze hängt stark vom Einfangquerschnitt der zu untersuchenden Substanz ab, der sich

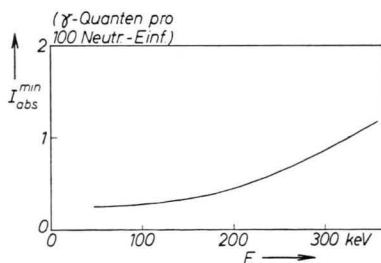


Abb. 4. Untere Nachweisgrenze für  $Rh^{104}$ -Einfang- $\gamma$ -Linien.

namentlich bei kleinen Beugungswinkeln in der Höhe des Untergrunds bemerkbar macht. Bei gleicher  $\gamma$ -Energie bedeutet ein kleiner Einfangquerschnitt einen schwachen Reflex und einen niedrigen Untergrund, ein hoher Einfangquerschnitt zwar einen starken Reflex, aber auch einen hohen Untergrund. Bei kleinen Winkeln ist der Untergrund ungefähr proportional dem Einfangquerschnitt der Quellsubstanz, so daß man für einen  $n$ -mal größeren Einfangquerschnitt in Näherung ein  $n^{1/2}$ -mal grö-

ßeres, d. h. günstigeres Verhältnis von Linienhöhe zur Untergrundschwankung erhält.

## 2. $\gamma$ -Zerfall von $Rh^{104m}$

$Rh^{104}$  hat einen isomeren Zustand mit 4,4 min Halbwertszeit<sup>15</sup>, der mit bestimmter Wahrscheinlichkeit durch die  $\gamma$ -Kaskade, über die der nach dem Neutroneneinfang hoch angeregte Kern zerfällt, gebildet wird. Es wurde daher der Versuch unternommen, die beobachteten Einfang- $\gamma$ -Linien dahingehend zu unterscheiden, ob sie prompt, d. h. unmittelbar nach dem Neutroneneinfang ausgesandt werden, oder ob sie mit der Halbwertszeit von 4,4 min des isomeren Zustandes abklingen.

Die Messungen wurden in der Weise durchgeführt, daß nach hinreichend langer Aktivierungszeit der Reaktor plötzlich abgeschaltet und dann abwechselnd die Intensität einer  $\gamma$ -Linie im Reflexmaximum und der Untergrund links oder rechts neben dem Reflex gemessen wurde. Da nach dem Abschalten des Reaktors die Energieniveaus unterhalb des isomeren Zustandes nicht mehr direkt durch prompte Übergänge aus höherenergetischen Niveaus bevölkert werden können, fallen die Intensitäten der verzögerten Linien im Moment des Reaktorabschaltens stark ab und sind deshalb nur noch sehr schwer vom Untergrund zu trennen. Aus diesem Grund war es notwendig, die Reaktorbrücke mit dem Kern ca.  $\frac{1}{2}$  min nach dem Abschalten in 1 – 1,5 m Entfernung vom Strahlrohr zu fahren, wodurch der Untergrund bedeutend verkleinert wurde. Wiederholte Messungen dieser Art bestätigten zunächst die schon bekannte Tatsache (s. Anm.<sup>16</sup>), daß der isomere Zustand  $Rh^{104m}$  mit 4,4 min Halbwertszeit unter Aussendung eines 51,4 keV- $\gamma$ -Quants zerfällt. Bei der 97,1 keV-Linie war der Intensitätssprung beim Abschalten des Reaktors so groß, daß einerseits kein deutlicher Abfall mit einer definierten Halbwertszeit mehr feststellbar war, während andererseits die Zählraten im Reflexmaximum noch eindeutig über denen des Untergrunds lagen, so daß keine sichere Entscheidung möglich war.

Es wurde deshalb eigens eine sehr große Rhodium-Quelle hergestellt ( $15 \times 5 \times 1,5$  mm<sup>3</sup>) und ihr Spektrum nach dem Abschalten und Wegfahren des Reaktors im direkten, ungebeugten Strahl mit einem 256-Kanal-Impulshöhenanalysator untersucht (siehe

<sup>15</sup> D. STROMINGER, J. M. HOLLANDER u. G. T. SEABORG, Rev. Mod. Phys. **30**, 585 [1958].

<sup>16</sup> W. C. JORDAN, J. M. CORK u. S. B. BURSON, Phys. Rev. **90**, 862 [1953].

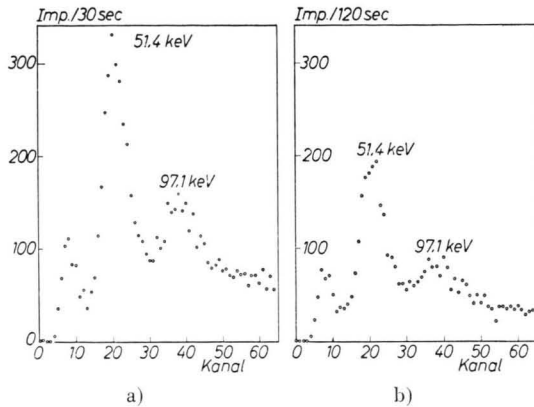


Abb. 5. Szintillationsspektrum einer Rhodium-Quelle hinter 3 mm Quarz: a) 4:40 min nach Abschalten des Reaktors, b) 15:10 min nach Abschalten des Reaktors.

Abb. 5). Durch die hohe Quarzabsorption wird die Rhodium-Röntgen-Linie praktisch vollständig unterdrückt (die in Abb. 5 bei Kanal 7–8 gelegene Linie stellt im wesentlichen nur den „escape“-Anteil der 51,4 keV-Linie dar) und die 51,4 keV-Linie noch so stark geschwächt, daß die an und für sich sehr schwache bei Kanal 40 gelegene Photolinie überhaupt erst deutlich erkennbar wird. Eine Eichmessung bestätigte die Identität dieser Linie mit dem 97,1 keV- $\gamma$ -Übergang des  $\text{Rh}^{104}$ -Einfang- $\gamma$ -Spektrums. Unter Berücksichtigung der Korrekturen für Absorption und Detektor-Nachweiswahrscheinlichkeit ergibt sich aus den Messungen ein  $\gamma$ -Intensitätsverhältnis der 51,4 keV-Linie zu der 97,1-keV-Linie

von 32 : 1. Eine grobe Messung der Halbwertszeit der 97,1 keV-Linie ergab den Wert 4,4 min von  $\text{Rh}^{104\text{m}}$ . Dieser 97,1 keV- $\gamma$ -Übergang wurde beim Zerfall von  $\text{Rh}^{104\text{m}}$  bisher noch nicht beobachtet.

Alle anderen Linien des Einfang- $\gamma$ -Spektrums erwiesen sich als prompte Übergänge.

#### IV. Diskussion

Messungen des  $\text{Rh}^{104}$ -Einfang- $\gamma$ -Spektrums liegen bisher schon von mehreren Autoren vor<sup>17–22</sup>. Die Ergebnisse von ESTULIN<sup>19, 20</sup> und DRAPER<sup>22</sup> sind in Tab. 2 wiedergegeben und den eigenen Messungen gegenübergestellt. Mit Ausnahme der 51,4 keV-Linie setzen sich die „Linien“ von ESTULIN und DRAPER aus mehreren  $\gamma$ -Linien zusammen, die auf Grund des sehr viel schlechteren Auflösungsvermögens der von diesen Autoren verwendeten Szintillationsspektrometer nicht mehr getrennt werden konnten.

Mit Ausnahme der Liniengruppe bei 213–217 keV ist die Übereinstimmung in den Absolutintensitäten mit den Werten von DRAPER befriedigend, mit den Werten von ESTULIN et al. aber weniger gut. Die eigenen Werte scheinen auch systematisch etwas höher zu liegen.

Stärkere höherenergetische Linien wurden weder von ESTULIN noch von DRAPER gefunden.

Abb. 6 zeigt das Termschema, das man bei Berücksichtigung aller neuerer Messungen für  $\text{Rh}^{104}$

Eigene Messung		DRAPER <sup>22</sup>		ESTULIN <sup>19, 22</sup>	
$E$ in keV	$I_{\text{abs}}$	$E$ in keV	$I_{\text{abs}}$	$E$ in keV	$I_{\text{abs}}$
51,423	$15,6 \pm 1,2$	50	17	—	—
97,114	$22,1 \pm 1,6$	94	24	96	17
100,797	$5,4 \pm 0,4$				
127,318	$5,7 \pm 0,4$	131	5	133	8
134,617	$6,6 \pm 0,5$				
178,836	$4,1 \pm 0,3$	185	23	176	19
180,859	$25,6 \pm 1,8$				
213,098	$2,0 \pm 0,2$				
215,489	$5,5 \pm 0,4$	220	10	217	9
217,915	$7,2 \pm 0,5$		( $\pm 10\%$ )		( $\pm 10-20\%$ )

Tab. 2. Vergleich verschiedener  $\text{Rh}^{104}$ -Einfang- $\gamma$ -Messungen ( $I_{\text{abs}}$  jeweils auf 100 Neutroneneinfänge bezogen).

<sup>17</sup> B. HAMERMESH u. V. HUMMEL, Phys. Rev. **88**, 916 [1952].

<sup>18</sup> G. A. BARTHOLOMEW u. B. B. KINSEY, Canad. J. Phys. **31**, 1025 [1953].

<sup>19</sup> I. V. ESTULIN, L. F. KALINKIN u. A. S. MELIORANSKIJ, J. Exp. Theor. Phys., USSR **4**, 752 [1957].

<sup>20</sup> I. V. ESTULIN, L. F. KALINKIN u. A. S. MELIORANSKIJ, J. Exp. Theor. Phys., USSR **5**, 801 [1957].

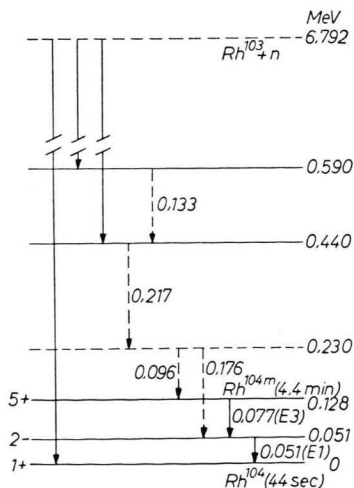
<sup>21</sup> L. V. GROSHOV, V. N. LUTSENKO, A. M. DEMIDOV u. V. I. PELEKHOV, Atlas of  $\gamma$ -Ray Spectra from Radiative Capture of Thermal Neutrons, Pergamon Press, London 1959.

<sup>22</sup> J. E. DRAPER, Phys. Rev. **114**, 268 [1959].

	$E_i$ (keV)	$E_j$ (keV)	$E_k = E_i + E_j$ (keV)	$E_i + E_j - E_k$ (keV)	$\Delta E_i^2 + \Delta E_j^2 + \Delta E_k^2$ (keV)
a	51,423	129,438	180,859	+ 0,0017	0,0191
b	51,423	134,617	186,045	- 0,0055	0,0288
c	51,423	161,636	213,098	- 0,039	0,0515
d	80,723	97,114	177,811	+ 0,0265	0,0286
e	80,723	186,045	266,750	+ 0,019	0,0348
f	97,114	100,797	197,881	+ 0,0289	0,0453
g	97,114	138,681	235,829	- 0,0342	0,0447
h	97,114	83,729	180,859	+ 0,017	0,0144

Tab. 3. Ritzsche Zweier-Kombinationen im Rh<sup>104</sup>-Einfang- $\gamma$ -Spektrum.

anzunehmen hat<sup>23-26</sup>. Aus den angegebenen Spin- und Paritätswerten wird verständlich, daß der 77 keV-E3-Übergang mit einem K-Konversionskoeffizienten von etwa 19 (s. Anm.<sup>27</sup>) im Beugungsspektrum nicht gefunden werden kann. Nachdem der 97,1 keV-Übergang mit den 4,4 min Halbwertszeit des Isomers Rh<sup>104m</sup> abklingt, kann seine Einordnung nach Abb. 6 nicht richtig sein, es muß vielmehr ein zusätzliches Niveau zwischen dem Grundzustand und dem isomeren Zustand angenommen werden. Aus der großen Intensität des 97,1 keV-Übergangs im Einfang- $\gamma$ -Spektrum kann geschlossen werden, daß er von der Multipolordnung E1, E2 oder höchstens M1 ist und deshalb nicht von dem isomeren Niveau ausgehen kann. Daher verbleibt nur die Möglichkeit, ein zusätzliches 97,1 keV-Niveau einzuführen, von dem aus der fragliche Übergang direkt in den Grundzustand führt.

Abb. 6. Termschema von Rh<sup>104</sup>.

Die Richtigkeit dieser Annahme wird durch das Ergebnis einer Untersuchung des Einfang- $\gamma$ -Spektrums auf Ritzsche Kombinationen bestätigt. Auf der PERM wurden maschinell alle Zweierkombinationen der 39  $\gamma$ -Linien aus Tab. 1 ermittelt, für welche die Beziehung

$$E_i + E_j - E_k \leq (\Delta E_i^2 + \Delta E_j^2 + \Delta E_k^2)^{1/2}$$

erfüllt ist, worin  $E$  und  $\Delta E$  die  $\gamma$ -Energien und deren relative Fehler bedeuten. Für die Ritzschen Kombinationen ist nur das Energieverhältnis von Bedeutung, so daß in  $\Delta E$  der Fehler der Gitterkonstanten und des Energie-Wellenlängen-Umrechnungsfaktors nicht berücksichtigt zu werden braucht. Tab. 3 zeigt das Ergebnis dieser Rechnungen.

Die Kombination h erfüllt die obige Bedingung gerade nicht mehr und wurde deshalb bei der maschinellen Berechnung nicht gefunden. Mit solchen Fällen hat man zu rechnen, da die Fehler statistischer Natur sind. Durch die vorgegebene Bedingung werden also nicht alle wahren Kombinationen erfaßt. Wählt man aber  $\Delta E$  größer, so nimmt die Zahl der zufälligen Kombinationen, auf deren Möglichkeit schon früher hingewiesen wurde (s. Anm. 1), zu stark zu.

Nachdem die Lage des 51,4 keV-Niveaus eindeutig bestimmt ist und die Kombination b ein 186 keV-Niveau festlegt, widersprechen die Kombinationen d und e einander, so daß mit Rücksicht auf b die Kombination d als zufällig angesehen werden muß.

Eine Abschätzung der zu erwartenden zufälligen Kombinationen wurde erhalten, indem mit den  $\gamma$ -Energien aus Tab. 1 die Zahl der Zweier-Kombinationen auf der PERM berechnet wurde, für die der mittlere Fehler zwischen  $-(2050 - 1950)$  eV,

<sup>23</sup> Nuclear Data Sheets. U.S. Government Printing Office, Washington 1960.

<sup>24</sup> R. K. GIRGIS u. R. VAN LIESHOUT, Nucl. Phys. **13**, 509 [1959].

<sup>25</sup> LANDOLT-BÖRNSTEIN, Bd. I/1, Springer-Verlag, Berlin 1961.

<sup>26</sup> S. J. DU TOIT u. L. M. BOLLINGER, Phys. Rev. **123**, 629 [1961].

<sup>27</sup> M. E. ROSE, Conversion Coefficients, North Holland Publishing Company, Amsterdam 1960.

– (1950 – 1850) eV, ..., – 50 – + 50 eV, ..., (1950 – 2050) eV liegt. Die Rechnung ergab, daß auf den mittleren Kanal von – 50 eV bis + 50 eV 8 Kombinationen fallen, auf jeden übrigen Kanal im Mittel 3. Man hat also bei 8 Kombinationen, welche die obige Bedingung erfüllen, mit 3 zufälligen Kombinationen zu rechnen. Es ist deshalb durchaus möglich, daß außer der Kombination d in Tab. 3 noch einige weitere Kombinationen zufälliger Natur sind.

In Abb. 7 ist das mittels dieser RITZschen Kombinationen erweiterte niederenergetische Termschema von  $\text{Rh}^{104}$  angegeben.

Die vorliegenden Messungen allein lassen noch keine sicheren Aussagen über Spin- und Paritätswerte zu; das Intensitätsverhältnis des 51,4 keV-Übergangs zu dem 97,1 keV-Übergang von 32 : 1 und die von DU TOIT und BOLLINGER<sup>26</sup> mit < 0,6 nsec angegebene Lebensdauer des 97,1 keV-Anregungszustandes lassen sich aber am besten mit einem M1-Charakter dieses Übergangs bzw. Spin 2+ des 97 keV-Niveaus vereinbaren<sup>28</sup>.

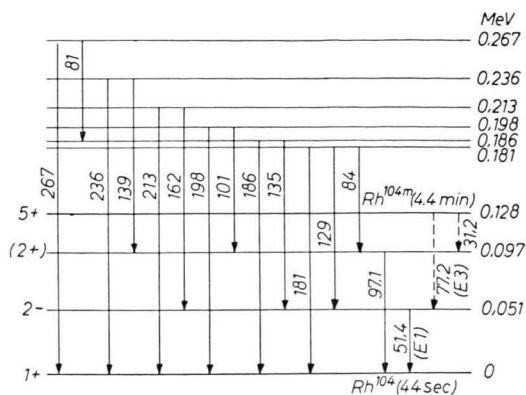


Abb. 7. Ergänztas Termschema von  $\text{Rh}^{104}$ .

Für die Anregung und Förderung dieser Arbeit bin ich Prof. Dr. H. MAIER-LEIBNITZ zu großem Dank verpflichtet. Dr. O. SCHULT möchte ich für viele Ratschläge und Diskussionen herzlich danken. Gedankt sei ferner Dr. F. BAUMGÄRTNER für die freundliche Mithilfe bei der Durchführung einiger radiochemischer Arbeiten und Dr. CHR. REINSCH für die Ausrechnung der Linienkombinationen mit der PERM.

<sup>28</sup> Kürzlich beendete  $\gamma$ – $\gamma$ -Koinzidenzmessungen des  $\text{Rh}^{104m}$ -Zerfalls bestätigten die von uns angegebene Einordnung

des 97,1 keV-Niveaus sowie den vermuteten M1-Charakter dieses Übergangs (persönliche Mitteilung von K. WIEN).

## Nachweis der Hyperfeinstrukturaufspaltung des 8,42 keV- $\gamma$ -Strahles von $\text{Tm}^{169}$ durch den Mößbauer-Effekt in $\text{Tm}_2\text{O}_3$

VON MICHAEL KALVIUS

Aus dem Laboratorium für Technische Physik der Technischen Hochschule München  
(Z. Naturforschg. **17 a**, 248–259 [1962]; eingegangen am 19. Januar 1962)

The recoilless nuclear resonance absorption of the 8.42 keV  $\gamma$ -ray of  $\text{Tm}^{169}$  in the oxide crystal was investigated. The source ( $\text{Er}_2\text{O}_3$ ) and the absorber ( $\text{Tm}_2\text{O}_3$ ) were kept at room temperature. The measured MÖSSBAUER-spectrum indicates pure quadrupole splitting of the 8.42 keV nuclear level of  $\text{Tm}^{169}$  for the Thuliumions with a  $C_2$ -symmetry as well as for those with  $C_{3i}$ -symmetry. The energy of the electric interaction was found to be

$$W_{el}(C_2) = 8 \times 10^{-7} \text{ ev} \quad \text{and} \quad W_{el}(C_{3i}) = 1.9 \times 10^{-6} \text{ ev}.$$

Mit der von MÖSSBAUER entdeckten Methode der rückstoßfreien Kernresonanzabsorption (MÖSSBAUER-Effekt)<sup>1</sup> ist es möglich geworden, die Form von  $\gamma$ -Linien, soweit es sich um den Übergang von einem niederenergetischen angeregten Niveau zum Grundzustand eines stabilen Kernes handelt, direkt auszu-

messen. Die Gestalt einer  $\gamma$ -Linie der Energie  $E_0$  läßt sich durch eine LORENTZ-Funktion:

$$N(E) = N_0 \left( \frac{1}{2} \Gamma_N \right)^2 / [(E - E_0)^2 + (\frac{1}{2} \Gamma_N)^2] \quad (1)$$

beschreiben, wobei die Halbwertsbreite  $\Gamma_N$  der Lebensdauer  $\tau$  des angeregten Kernzustandes umgekehrt proportional ist:

$$\Gamma = \hbar / \tau. \quad (2)$$

<sup>1</sup> R. L. MÖSSBAUER, Z. Phys. **151**, 124 [1958]; Z. Naturforschg. **14 a**, 211 [1959].