

$-(1950 - 1850)$ 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 Rh¹⁰⁴ angegeben.

Die vorliegenden Messungen allein lassen noch keine sicheren Aussagen über Spin- und Paritäts-werte zu; das Intensitätsverhältnis des 51,4 keV-Übergangs zu dem 97,1 keV-Übergang von 32 : 1 und die von DU TOIT und BOLLINGER²⁶ 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 vereinbaren²⁸.

²⁸ Kürzlich beendete γ - γ -Koinzidenzmessungen des Rh^{104m}-Zerfalls bestätigten die von uns angegebene Einordnung

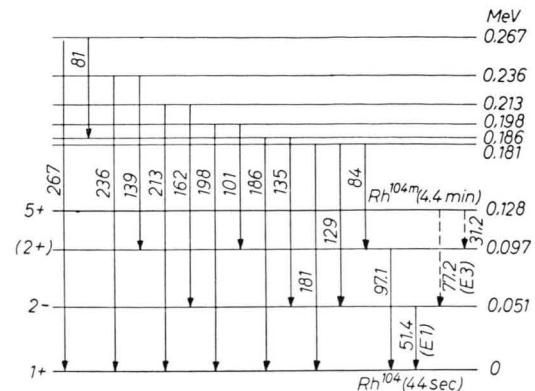


Abb. 7. Ergänztes Termschema von Rh¹⁰⁴.

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.

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

Nachweis der Hyperfeinstrukturaufspaltung des 8,42 keV- γ -Strahles von Tm¹⁶⁹ durch den Mößbauer-Effekt in Tm₂O₃

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 γ -ray of Tm¹⁶⁹ in the oxide crystal was investigated. The source (Er_2O_3) and the absorber (Tm_2O_3) were kept at room temperature. The measured MößBAUER-spectrum indicates pure quadrupole splitting of the 8.42 kev nuclear level of Tm¹⁶⁹ 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)¹ ist es möglich geworden, die Form von γ -Linien, soweit es sich um den Übergang von einem niederenenergetischen angeregten Niveau zum Grundzustand eines stabilen Kernes handelt, direkt auszu-

¹ R. L. MößBAUER, Z. Phys. 151, 124 [1958]; Z. Naturforschg. 14 a, 211 [1959].

messen. Die Gestalt einer γ -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 Γ_N der Lebensdauer τ des angeregten Kernzustandes umgekehrt proportional ist:

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



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

Die jeweilige Lebensdauer der für MöSSBAUER-Experimente bisher benutzten Kernniveaus² liegt etwa zwischen 10^{-11} und 10^{-6} sec.

In der Regel wird der strahlende Kern ein magnetisches Dipol- bzw. ein elektrisches Quadrupolmoment besitzen, er wird also, falls am Kernort ein magnetisches bzw. ein inhomogenes elektrisches Feld existiert, mit diesem in Wechselwirkung treten. Infolge der hohen Schärfe der γ -Linien kann diese Wechselwirkungsenergie vergleichbar mit der Linienbreite werden, man beobachtet dann eine Verbreiterung, in günstigen Fällen auch eine Aufspaltung der γ -Linie in mehrere Hyperfeinkomponenten. Der MöSSBAUER-Effekt hat sich daher als besonders wirkungsvolle Methode zur Erforschung der inneren Felder in Kristallen erwiesen.

Die Gegenwart paramagnetischer Dipole ist stets dann gegeben, wenn die den Kristall aufbauenden Atome oder Ionen eine nur teilweise gefüllte Elektronenschale aufweisen. In paramagnetischen Substanzen ist jedoch die Richtung des magnetischen Feldvektors am Kernort nicht stationär. Ein im Mittel von Null verschiedenes Feld erhält man nur, wenn die Relaxationszeiten lang gegen die reziproke Präzessionsfrequenz des Kernes im Hüllenfeld sind. Die Spin-Gitter-Relaxationszeiten sind aber, außer bei sehr tiefen Temperaturen, so kurz, daß im Falle paramagnetischer Ionen keine magnetische HFS-Aufspaltung erwartet werden darf. Um Aussagen über magnetische Feldverhältnisse am Kernort zu erhalten, ist man daher hauptsächlich auf ferro- bzw. antiferromagnetische Kristalle angewiesen.

Ferro- und Antiferromagnetismus findet sich in der Eisengruppe und bei den Seltenen Erden. Beide Gruppen gehören zu den Übergangselementen, die eine nicht abgeschlossene innere Schale besitzen, bei der Eisengruppe die 3d-, bei den Seltenen Erden die 4f-Schale.

Für die Existenz eines elektrischen Feldgradienten am Kernort ist primär das Feld der den Kristall aufbauenden Ionen verantwortlich; dieses ist inhomogen, falls die Gittersymmetrie niedriger als kubisch ist. Den Hauptbeitrag zum Feldgradienten am Kernort liefert jedoch nicht das Kristallfeld direkt, sondern die darin hervorgerufene Polarisation der Elektronenhülle (STERNHEIMER-Effekt). Die auf diese Weise erzeugten Feldgradienten sind mehr als zehnmal größer als die des Kristallfeldes direkt.

Bei den Übergangselementen wird der Feldgradient am Kernort weniger von einer Polarisation der abgeschlossenen Elektronenschalen geliefert, sondern hat ebenso wie das dort vorhandene hohe Magnetfeld seine Ursache in der Existenz einer nicht abgeschlossenen inneren Schale. Im Kristallfeld wird die m_L - bzw. m_J -Entartung des Hüllengrundzustandes aufgehoben. Die Unterniveaus besitzen keine kugelförmige Ladungsverteilung mehr und spiegeln die Symmetrie des Gitters wider. Da auch hier vorausgesetzt werden kann, daß die Relaxationszeit kurz gegen die reziproke Präzessionsfrequenz des Kernes ist, ist der wirksame Feldgradient am Kernort von der Besetzung der einzelnen Unterniveaus des Elektronengrundzustandes abhängig. Er verschwindet bei gleichmäßiger Besetzung der Untergestände vollständig. In der Eisengruppe ist die Aufspaltung des Hüllengrundzustandes mit etwa 5000 cm^{-1} so groß, daß selbst bei Zimmertemperatur praktisch nur das unterste Niveau besetzt ist. Dagegen ist diese Aufspaltung bei den Seltenen Erden mit 300 cm^{-1} bedeutend geringer, so daß hier eine starke Temperaturabhängigkeit der Quadrupolwechselwirkung zu erwarten ist.

Es ist ein besonders glücklicher Umstand, daß gerade die 14,4 keV- γ -Linie von Fe⁵⁷ für Untersuchungen mit der MöSSBAUER-Methode besonders geeignet ist, einmal, weil hier trotz der niederen Energie des Überganges, was einen hohen Anteil rückstoßfrei emittierter und absorbiert Strahlen bedeutet, der Konversionskoeffizient klein ist, zum anderen, weil die Lebensdauer des angeregten Zustandes lang (10^{-7} sec) und die Linienbreite daher klein gegen die Hyperfeinwechselwirkung ist. Die Anwendung des MöSSBAUER-Effektes zur Erforschung der inneren Felder ist daher bis auf wenige Ausnahmen auf Eisen und seine Verbindungen beschränkt gewesen.

Auf der anderen Seite findet sich speziell bei den Seltenen Erden eine Vielzahl von Kernzuständen mit Anregungsenergien um 100 keV und darunter. Die Lebensdauern der ersten angeregten Zustände liegen allerdings meist im Bereich von 10^{-9} sec; die in einem MöSSBAUER-Experiment zu erzielende Energieauflösung ist nicht so gut im Vergleich mit der 14,4 keV- γ -Linie von Fe⁵⁷. Jedoch ist die in diesem Gebiet vorherrschende starke Deformation des Atomkernes die Ursache sehr hoher Kernquadrupolmomente, so daß zu hoffen ist, gerade hier die elektrische Aufspaltung gut auflösen zu können. In

² E. COTTON, J. Phys. Radium **21**, 265 [1960].

der vorliegenden Arbeit wird die Hyperfeinstruktur aufspaltung der 8,42 keV- γ -Linie von Tm¹⁶⁹, eingebaut in den Oxydkristall, bei Zimmertemperatur beschrieben. Entsprechende Messungen im Gebiet der Seltenen Erden liegen außer für das Isotop Tm¹⁶⁹ (s. Anm. ^{3, 4)} bisher nur bei tiefen Temperaturen (26 keV- γ -Linie von Dy¹⁶¹ bei 80 °K ⁵, 80,6 keV- γ -Linie von Er¹⁶⁶ bei 20 °K ⁶, 84 keV- γ -Linie von Yb¹⁷⁰ bei 20 °K ⁷) vor. Neben Fe⁵⁷ ist Tm¹⁶⁹ der einzige bisher bekannte Fall, wo rückstoßfreie Kernresonanzabsorption bei Zimmertemperatur und höheren Temperaturen ^{8a} nachgewiesen werden konnte. Aus diesem Grund eignet sich Tm¹⁶⁹ zur Untersuchung der inneren Feldverhältnisse in den Kristallen der Seltenen Erden und ihrer Verbindungen besonders gut, vor allem weil Tm-Metall unterhalb 51 °K antiferromagnetisch ^{8b} und unterhalb 20 °K ferromagnetisch ^{8c} sein soll.

1. Das 8,42 keV-Niveau in Tm¹⁶⁹

Die genaue energetische Lage mit 8,42 keV sowie den Spin von $I = \frac{3}{2}$ des ersten angeregten Kernzustandes von Tm¹⁶⁹ legten HATCH et al. ⁹ durch Untersuchung des Konversionselektronenspektrums von Tm¹⁶⁹ fest. Der M1-Übergang zum Grundzustand $I = \frac{1}{2}$ ¹⁰ besitzt eine E2-Beimischung $< 1^{0/00}$ ¹¹. Mit 8,42 keV liegt das erste angeregte Niveau energetisch unterhalb der L_{III}-Absorptionskante von Tm (8,65 keV), deshalb ist L-Konversion nicht mehr möglich. Dies bedeutet eine wesentliche Einschränkung der Größe des Konversionskoeffizienten, der nach CHARPAK und SUZOR ¹² $\alpha_{M+N} = 106$ beträgt. Dennoch bereitet der direkte Nachweis der 8,42 keV- γ -Strahlung Schwierigkeiten ¹³, da diese inmitten der Tm L-RÖNTGEN-Strahlung ($T_{mL\alpha_1} = 7,18$ keV, $T_{mL\gamma_1} = 9,42$ keV) liegt.

Die Halbwertszeit des 8,42 keV-Zustandes ist 1958 von BEEKHUIS und DEWAARD zu $(3,5 \pm 0,5)$

$\cdot 10^{-9}$ sec gemessen worden ¹⁴. Neuere Messungen von BLECHSCHMIDT et al. ¹⁵ ergaben in guter Übereinstimmung $T_{1/2} = (3,24 \pm 0,17) \cdot 10^{-9}$ sec, wohingegen HATCH et al. ¹⁶ eine merklich längere Halbwertszeit von $T_{1/2} = (7 \pm 2) \cdot 10^{-9}$ sec angeben.

2. Quelle und Absorber

Als Quelle der 8,42 keV- γ -Strahlung kommen sowohl Yb¹⁶⁹ als auch Er¹⁶⁹ in Betracht. Beide Isotope lassen sich bequem durch Neutroneneinfang in einem Reaktor herstellen. Yb¹⁶⁹ zerfällt durch K-Einfang in Tm¹⁶⁹ und weist mit 33 Tagen ¹⁷ eine sehr günstige Halbwertszeit auf, zudem lassen sich hohe spezifische Aktivitäten erreichen. Es hat jedoch den Nachteil einer sehr starken charakteristischen RÖNTGEN-Strahlung, so daß es zumindestens für ein Transmissionsexperiment nicht in Frage kommt.

Es wurde als Quelle deshalb Er¹⁶⁹ ($T_{1/2} = 9$ d) ¹³ gewählt, obwohl sich hiermit nur eine geringe spezifische Aktivität erzeugen läßt. Ferner ist nachteilig, daß die L_{III}-Absorptionskante in Er mit 8,36 keV unterhalb 8,42 keV liegt. Der Photoabsorptionsquerschnitt ist somit beim Er für 8,42 keV- γ -Strahlung etwa um den Faktor 3 größer als der vom Yb, was die zulässige Dicke der Quelle entsprechend reduziert.

Zur Herstellung der Quelle diente Erbium-Oxydpulver mit einem angegebenen Reinheitsgrad von 99,9%. Darin ist etwa zu 27% Er¹⁶⁸ enthalten. Die Bestrahlung des Erbiumoxydes erfolgte teilweise am FRM München, teilweise am Reaktor EL-3 in Saclay bei einem Neutronenfluß von $2 \cdot 10^{13}$ n/cm² sec. Die Bestrahlungsdauer betrug drei Wochen, die erzielte spezifische Aktivität rund 0,5 mC/mg. An langlebiger Fremdaktivität entsteht vorzugsweise als Folgeprodukt von Er¹⁷¹ ($T_{1/2} = 7,8$ h) Tm¹⁷¹ ($T_{1/2} = 1,9$ a).

Die Quellen wurden 4 Tage gealtert und dann zur Ausheilung von Strahlenschäden 10 Stdn. bei 1000 °C unter Luftatmosphäre getempert. Anschließend wurde das aktive Oxydpulver mit einer Lösung von Polystyrol in Benzol sedimentiert, wodurch selbsttragende Scheiben von 20 mm Ø und mit einem Flächengewicht von 3 mg/cm² entstanden. Die Quelle wurde fest zwischen zwei Polystyrolscheiben mit einer Dicke von 200 mg/cm²

³ M. KALVIUS, P. KIENLE, K. BÖCKMANN u. H. EICHER, Z. Phys. **163**, 87 [1961].

⁴ R. L. COHEN, U. HAUSER u. R. L. MöSSBAUER, Bull. Amer. Phys. Soc. Ser. II, **6**, 364 [1961].

⁵ S. OFER, P. AVIVI, R. BAUMINGER, A. MARINOV u. S. G. COHEN, Phys. Rev. **120**, 406 [1960].

⁶ F. W. STANEK, Z. Phys. **166**, 6 [1962].

⁷ F. WAGNER, F. W. STANEK, P. KIENLE u. H. EICHER, Z. Phys. **166**, 1 [1962].

^{8a} R. L. MöSSBAUER, Proceedings of the Second MöSSBAUER Conference, Paris, Sept. 13–16, 1961; A. SCHOEN u. D. M. J. COMPTON eds. (New York, John Wiley & Son, erscheint demnächst).

^{8b} F. H. SPEDDING, Progress in Low Temperature Physics, Bd. II, S. 390, Amsterdam 1957.

^{8c} H. LEIPFINGER, Z. Phys. **150**, 415 [1958].

⁹ E. N. HATCH, F. BOEHM, P. MARMIER u. D. W. M. DUMOND, Phys. Rev. **104**, 744 [1953].

¹⁰ K. H. LINDBERGER, Z. Phys. **141**, 476 [1955].

¹¹ E. N. HATCH u. F. BOEHM, Bull. Amer. Phys. Soc., Ser. II, **2**, 390 [1956].

¹² G. CHARPAK u. F. SUZOR, J. Phys. Radium **20**, 513 [1959].

¹³ A. BISI, S. TERRANI u. L. ZAPPA, Nuovo Cim. **14**, 758 [1956].

¹⁴ H. BEEKHUIS u. H. DE WAARD, Physica **24**, 767 [1958].

¹⁵ H. BLECHSCHMDIT, J. CHRISTIANSEN u. H. P. HERMSEN, vorgelesen auf der Physiker-Tagung Wien, Oktober 1961.

¹⁶ E. N. HATCH, U. SCHNEIDER, K. RUNGE u. W. KERLER, vorgelesen auf der Physiker-Tagung Wien, Oktober 1961.

¹⁷ W. BOTHE, Z. Naturforsch. **1**, 173 [1946].

montiert. Die Kunststoffsscheiben dienten gleichzeitig als Elektronenabsorber, sie mußten so dick gewählt werden, weil neben den β -Strahlen des Er¹⁶⁹ ($E_{\beta}^{\max} \approx 0,33$ MeV) auch noch die β -Teilchen der Verunreinigung an Tm¹⁷⁰ mit $E_{\beta}^{\max} \approx 1$ MeV auftreten (s. auch Abschn. 3).

Die Absorber bestanden aus Thulium-Oxyd pulver, das nach einem von FODOR und COHEN¹⁸ angegebenen Verfahren auf einer 30 mg/cm² starken Hostaphanfolie als Träger, ebenfalls mit einer Lösung von Polystyrol in Benzol, sedimentiert wurde. Zur Erzielung einer möglichst gleichmäßigen Schicht wurden zunächst die dickeren Körner durch Aufschlämmen in Äther abgetrennt.

Als günstigste Absorberdicken ergaben sich in Versuchen Werte zwischen 10 und 15 mg/cm². Für die Hauptmessung wurde ein 13 mg/cm² starker Tm₂O₃-Absorber verwendet.

3. Meßverfahren und Untergrundkorrektur

Die Aufnahme des MöSSBAUER-Spektrums erfolgte durch Bestimmung der Transmission durch den Resonanzabsorber als Funktion einer relativen Geschwindigkeit v zwischen Quelle und Absorber. Als Meßgröße bildet man üblicherweise das Verhältnis

$$\varepsilon(v) = [N(\infty) - N(v)]/N(\infty). \quad (3)$$

$N(\infty)$ soll die vom Detektor nachgewiesene Zählrate bei einer so hohen Geschwindigkeit zwischen Quelle und Absorber bedeuten, daß die Resonanz sicher zerstört ist. $\varepsilon(v)$ ist nur dann gleich der absoluten Größe der Resonanzabsorption $R_A(v)$, wenn im Detektor kein Anteil einer Strahlung fremder Energie mit nachgewiesen wird. Die Intensität einer derartigen Untergrundstrahlung N_u ist naturgemäß von der Absorbergeschwindigkeit v unabhängig, so daß in dem Quotienten (3) im Nenner noch N_u als additive Konstante hinzuzufügen ist:

$$R_A(v) = [N(\infty) - N(v)]/[N(\infty) - N_u]. \quad (4)$$

Die Intensität der Untergrundstrahlung läßt sich durch Verwendung eines auf die resonanzfähige γ -Linie eingestellten Einkanaldiskriminators verringern, jedoch ist gerade bei niedrigen γ -Energien das energetische Auflösungsvermögen der Detektoren nicht sehr gut, so daß auf die Untergrundstrahlung korrigiert werden muß. Es wurde bereits darauf hingewiesen, daß gerade im Falle des Tm¹⁶⁹ die 8,42 keV- γ -Linie von RÖNTGEN-Strahlung überdeckt wird.

Wie man aus Abb. 1, die das vom Argonproportionalzährlrohr gelieferte Impulshöhenpektrum zeigt,

entnimmt, wird vom Zährlrohr eine einzige breite Linie mit einem Maximum bei 7,7 keV nachgewiesen. Eine Struktur im γ -Spektrum bei 8,42 keV zeigt sich nicht, die Untergrundstrahlung muß also mindestens aus einer der γ -Strahlung eng benachbarten etwas niederenergetischeren Linie von ungefähr derselben Intensität bestehen. Als Ursache kommt mit hoher Wahrscheinlichkeit nur L-RÖNTGEN-Strahlung in Betracht, da γ -Linien entsprechender Energie in den als Verunreinigung in Frage kommenden Aktivitäten bisher nicht gemessen wurden. Energetisch möglich sind die L-Linien von Er, Tm und Yb.

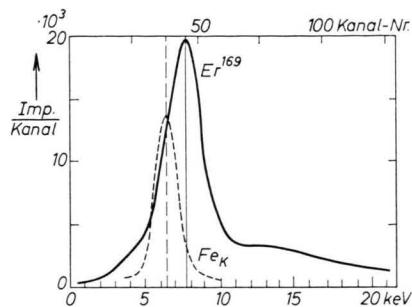


Abb. 1. Vom Argonproportionalzährlrohr geliefertes γ -Spektrum der Er₂O₃-Quelle. Zum Vergleich ist die Eisen K-RÖNTGEN-Linie ebenfalls eingezeichnet.

Zur genaueren Deutung der Untergrundstrahlung wurden die folgenden Messungen, jeweils mit einer frischen, d. h. einer etwa 10 Tage (vom Bestrahlungsende ab gerechnet) alten und mit einer 2 Monate abgelagerten Er-Quelle vorgenommen.

a) γ -Spektrum im Argonproportionalzährlrohr

Sowohl die frische als auch die abgelagerte Quelle zeigen im wesentlichen dasselbe Spektrum. Die Linie ist bei der abgelagerten Quelle etwas schmäler, aber immer noch gegenüber der 6,4 keV-Fe-K-Linie zu breit, um nur aus einer Komponente zu bestehen.

b) Bestimmung der Halbwertszeit

Für die frische Quelle wurde das Abklingen der vom Proportionalzährlrohr gelieferten breiten Linie bestimmt. Die Halbwertszeit entsprach mit 8,75 $\pm 0,6$ d innerhalb des Fehlerbereiches der vom Er¹⁶⁹. Bei der abgeklungenen Quelle wurde aus Intensitätsgründen die Abnahme der β -Aktivität mit einem Methandurchflußzährlrohr gemessen. Das Ergebnis, eine Halbwertszeit von 138 ± 10 d, läßt sich Tm¹⁷⁰ zuordnen.

¹⁸ G. FODOR u. B. L. COHEN, Rev. Sci. Instrum. 31, 73 [1960].

c) Bestimmung der maximalen β -Energie durch Absorption

Die Absorptionskurve der frischen Er-Quelle ließ sich in zwei Komponenten mit den Maximalenergien

$$E_{\beta_1}^{\max} = 0.34 \text{ MeV}; \quad E_{\beta_2}^{\max} = 1 \text{ MeV}$$

und einem Intensitätsverhältnis $I_{\beta_2}/I_{\beta_1} \approx 10^{-2}$ auflösen. Die niederenergetische Komponente kann Er¹⁶⁹, die hochenergetische Tm¹⁷⁰ zugeordnet werden; die abgelagerte Quelle zeigt nur noch die hochenergetische Komponente.

Zusammenfassend ist zu sagen, daß als langlebige Fremdaktivität nur Tm¹⁷⁰ nachzuweisen war, welches durch Neutroneneinfang in Tm¹⁶⁹ entsteht. Die Fremdaktivität ist jedoch zu hoch, um bei ca. $10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$ durch Doppel-einfang aus Er¹⁶⁸ zu entstehen. Tm¹⁶⁹ muß also bereits als Verunreinigung (ca. 0,5% Tm₂O₃) im Erbiumoxyd enthalten sein.

Die als Folgeprodukt des Neutroneneinfangs in Er¹⁷⁰ entstehende Aktivität an Tm¹⁷¹ ist wegen dessen langer Halbwertszeit gering. Ferner gehen beim Zerfall des Tm¹⁷¹ 98% der Zerfälle in den Grundzustand von Yb¹⁷¹ über, hingegen wird in Yb¹⁷⁰ der erste angeregte Zustand bei 24% der Zerfälle besetzt. Ein Nachweis der Elektronenaktivität des Tm¹⁷¹ war infolge der niedrigen Maximalenergie von nur 0,098 MeV mit der hier beschriebenen Anordnung nicht möglich. Es konnte aber die 67 keV- γ -Strahlung von Tm¹⁷¹ in dem mit einem Xenonproportionalzählrohr aufgenommenen γ -Spektrum der abgelagerten Er-Quelle nachgewiesen werden.

Diese beiden Fremdaktivitäten liefern infolge Konversion ihrer γ -Linien Yb-L-RÖNTGEN-Strahlung. Eine Abschätzung der Intensität so erzeugter Strahlung auf Grund der bekannten Zerfallsdaten¹⁹ liefert $I_L(\text{Yb})/I_\gamma(8,42) \leqq 0,1$.

Die Untergrundstrahlung kann somit nicht allein von den Verunreinigungen an Tm¹⁷⁰ und Tm¹⁷¹ herühren. Tm-L-Strahlung kommt als Untergrund nicht in Betracht. Die einzige als Verunreinigung mögliche Aktivität, die eine derartige Strahlung liefern würde, ist Yb¹⁶⁹, jedoch konnten im Szintillationsspektrum der Er-Quelle keine für dieses Isotop typischen γ -Linien gefunden werden.

Somit bleibt noch Er-L-Strahlung übrig. Sie kann einmal bei der K- oder L-Ionisation der Er-Atome der Quelle durch Stoß mit dem vom Zerfall des Er¹⁶⁹

herührenden β -Teilchen, zum anderen durch Photoabsorption der 8,42 keV- γ -Strahlung in der Quelle entstehen. Die Intensität der durch Selbstabsorption entstehenden RÖNTGEN-Strahlung läßt sich zu $(I_L/I_\gamma)_{SA} = 0,2$ abschätzen. Die durch Elektronenstoß erzeugte Intensität anzugeben, ist schwieriger. Nach MASSEY und BURHOP²⁰ liegen absolute Werte der Wirkungsquerschnitte für die Ionisation innerer Schalen lediglich für K-Ionisation in einigen Elementen vor. Für L-Ionisation sind weder absolute theoretische noch experimentelle Werte bekannt, auch existieren keine relativen Messungen zur K-Ionisation. Immerhin ist aus der Größenordnung der Ionisationsquerschnitte der K-Schalen bei niedriger Elektronenenergie (ca. 100 b) zu entnehmen, daß über diesen Mechanismus wohl der größte Anteil an RÖNTGEN-Strahlung erzeugt wird.

Setzt man also voraus, daß der Untergrund im wesentlichen aus Er-L-Strahlung besteht, so kann man aus der Lage des Maximums und der Breite der vom Argonproportionalzählrohr gelieferten γ -Linie (Abb. 1) den darin enthaltenen Anteil an 8,42 keV-Strahlung roh abschätzen. Diese Zerlegung des γ -Spektrums zeigt die Abb. 2. Dort ist ebenfalls die Lage des ausgeblendeten Meßkanals eingezeichnet. In ihm beträgt demnach der Anteil an 8,42 keV- γ -Strahlung ungefähr 30%.

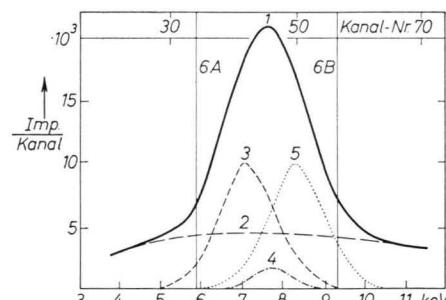


Abb. 2. Zerlegung der γ -Linie um 8 keV der Er₂O₃-Quelle.
1. Vom Argonproportionalzählrohr geliefertes γ -Spektrum.
2. Kontinuierlicher Untergrund. 3. Er-L-RÖNTGEN-Linie. 4. Tm-L-RÖNTGEN-Linie. 5. 8,42 keV- γ -Linie. (6A, 6B) Grenzen der bei der Messung benutzten Kanaleinstellung.

4. Meßapparatur

Die DOPPLER-Verschiebung wurde durch Bewegung des Absorbers relativ zu der in Ruhe befindlichen Quelle erzeugt. Es kamen zwei verschiedene Methoden zur An-

¹⁹ Nuclear Data Sheets, Nat. Res. Counc. 59-2-73, [1959].

²⁰ H. S. W. MASSEY u. E. H. S. BURHOP, Electronic and Ionic Impact Phenomena. Clarendon Press, Oxford 1956.

wendung. Einmal erfolgte die Bewegung des Absorbers mit regelbarer konstanter Geschwindigkeit; der auf diese Weise ausgemessene Transmissionsverlauf beschränkte sich auf das Gebiet zwischen 0 und $\pm 4,5$ cm pro Sekunde. Zum anderen wurde der Absorber sinusförmig bewegt, das Absorptionsspektrum dabei automatisch mit einem Vielkanalanalysator aufgenommen. Dieses Verfahren konnte auch bei hohen Absorbergeschwindigkeiten angewendet werden.

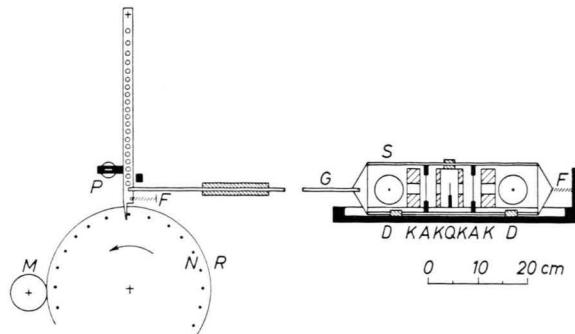


Abb. 3. Apparatur zur Erzeugung konstanter DOPPLER-Geschwindigkeit zwischen Quelle Q und Absorber A. R Eisenrad mit Nocken N; M Antrieb; P Photoelektrische Steuerung; F Rückholfeder; G Übertragungsgestänge; S Absorberschlitten; D Proportionalzählohre; K Kollimatoren.

Zur Erzeugung der konstanten Absorbergeschwindigkeit diente die in Abb. 3 gezeigte Anordnung: Ein schweres Eisenrad von 320 mm \varnothing wurde von einem laufuhigen drehzahlsteifen Tonbandmotor mittels Reibrollenantrieb mit konstanter Winkelgeschwindigkeit bewegt. An der Peripherie des Rades befanden sich 24 Stahlstifte. Ein in radialer Richtung angeordneter Hebel wurde von einem Stift jeweils ¹/₂₄ einer Raddrehung lang mitgenommen, klinkte dann aus und wurde von einer Zugfeder bis zu einem Anschlag zurückgezogen, von wo aus erneut die Mitnahme durch den nächstfolgenden Stift erfolgte. Mit dem Hebel war über ein Gestänge der Absorberschlitten verbunden. Zur besseren Meßzeitausnutzung waren in den Schlitten zwei Absorber symmetrisch zur Quelle angeordnet. Sie konnten zwischen zwei Kollimatoren hin und her bewegt werden. Sämtliche Lagerungen waren reibungsarm ausgeführt, die bewegten Massen betrugen nur etwa 50 g, so daß auch bei hohen Geschwindigkeiten der Rücklauf höchstens 20% der Zeit in Anspruch nahm. Während des Vorlaufes ist die durch die Geometrie bedingte Änderung der Geschwindigkeit ungefähr -1% . Der Gesamtabstand Quelle-Detektor betrug 100 mm, der Raumwinkel auf jeder Seite etwa 10^{-2} , die durch die Winkeldivergenz verursachte Geschwindigkeitsverschmierung war maximal $\pm 2,5\%$. Da der Abstand Quelle-Detektor konstant bleibt, können Intensitätsschwankungen der auf den Detektor treffenden Strahlung außer durch Resonanzabsorption nur durch die etwas von der Absorberstellung abhängige Streuung sowie durch ungleichmäßige Belegung des Absorbers bedingt sein.

Tatsächlich blieben derartige Schwankungen unter $\frac{1}{2}\%$, immerhin mußte, da nur kleine Meßeffekte zu erwarten sind, die Amplitude der Absorberbewegung streng konstant gehalten werden. Dazu wurde mit einer Photodiode und anschließender elektronischer Torschaltung ein konstanter Meßweg ausgeblendet, ferner sorgte eine durch Mikroschalter betätigtes Relaischaltung dafür, daß während des Rücklaufes die Zählapparatur ausgeschaltet blieb. Durch die Verwendung von zwei Absorbern wurde bei positiven und negativen Geschwindigkeiten gleichzeitig gemessen. Als Geschwindigkeitschwankungen wurden im Bereich von 0,05 bis 2 cm/sec weniger als 0,5%, im Bereich von 2 bis 4 cm/sec etwa 2% gemessen. Als Hauptursache hierfür wurden Schwingungen im Reibrollenantrieb infolge der wechselnden Belastung ermittelt. Der Motor mit dem Nockenrad war mechanisch mit dem Brett, auf dem die Quelle und Detektoren montiert waren, nur durch das Schubgestänge verbunden; auf die Quelle konnten so keine Schwingungen übertragen werden. Um den durch Schwingungen in der Elektronik verursachten Fehler klein zu halten, wurde bei einer bestimmten Geschwindigkeit jeweils nur 10 min gemessen. Zum Ausgleich langsamer Änderungen in der Verstärkung und der damit verbundenen Schwingungen des Meßeffektes erfolgte alle 2 Stunden eine Überprüfung der Kanaleinstellung durch eine Eichmessung mit der 6,4 keV-Eisen-K-Linie.

Bei der automatischen Aufnahme des Geschwindigkeitsspektrums mit einem Vielkanalanalysator wurde bis zu Absorbergeschwindigkeiten von etwa 30 cm/sec gemessen. Bei so hohen Geschwindigkeiten ist es am günstigsten, den Absorber sinusförmig zu bewegen. Die Speicherung jedes Zählimpulses erfolgt hierbei in einem bestimmten, der momentanen Geschwindigkeit des Absorbers zugeordneten Kanal eines Vielkanalanalysators. Dieses Verfahren hat den Vorteil, daß das gesamte Geschwindigkeitsspektrum praktisch gleichzeitig aufgenommen wird, und man daher von Schwingungen der Elektronik unabhängig wird. Es wurde in den unterschiedlichsten Anordnungen auch von anderer Seite benutzt²¹. Die Erzeugung der Sinusbewegung erfolgte mechanisch mit einem von einem Synchronmotor angetriebenen Kurzeltrieb. Auf diese Weise war die Amplitude der Absorberbewegung besser als 0,2% und die Frequenz auf 0,3% konstant. Die Momentangeschwindigkeit ist dann durch die Bestimmung der Phase vollständig festgelegt. Diese ließ sich durch Messung der Höhe einer mit der Absorberbewegung synchronisierten Sägezahnspannung bestimmen. Jedes im Detektor nachgewiesene γ -Quant liefert, sofern es in den von dem Einkanal diskriminatoren ausgebündelten Energiebereich fällt, einen Einheitsimpuls. Dieser tastet über eine Diodenschaltung die mit der Absorberbewegung synchronisierte Sägezahnspannung auf. Es entsteht so ein Impuls, dessen Höhe ein Maß für die Momentangeschwindigkeit des Absorbers ist. Diese Impulse wurden dann von einem TMC 256-Kanal diskriminatoren analysiert. Zur Erzeugung der Sägezahnspannung diente der Kippgenerator eines Tektronix-

²¹ Siehe z. B. S. L. RUBY, L. M. EPSTEIN u. K. H. SUN, Rev. Sci. Instrum. **31**, 580 [1960].

nix-Oszillographen, welcher durch eine am Kurbeltrieb angebrachte photoelektrische Steuerung kurz vor Erreichen der maximalen Absorbergeschwindigkeit ausgelöst wurde. Es stellte sich heraus, daß bei Eingabe von beliebigen statistischen Impulsen in die Modulationsstufe die Kanäle des Vielkanalanalysators nur bis auf ca. 1% gleichmäßig vollgeschrieben werden, das bedeutet, die Öffnungszeit der einzelnen Kanäle ist unterschiedlich. Als Ursache sind vor allem Schwankungen der Kanalbreite des Analysators anzusehen. Sie werden von der Herstellerfirma etwa mit $\frac{1}{2}\%$ angegeben. Bei der verwendeten Anordnung können die Schwankungen aber noch vergrößert werden, wenn der zur Modulation verwendeten Sägezahnspannung höherfrequente Schwingungen überlagert sind. Da die erforderliche Meßgenauigkeit etwa 0,1% betragen mußte, war eine dauernde Vergleichsmessung der Kanalöffnungszeiten notwendig. Dazu wurde die Quelle auf einen Tieftonlautsprecher montiert, der, mit einer Sinusspannung von 73 Hz betrieben, die Quelle mit einer Maximalgeschwindigkeit von 50 cm/sec bewegte. In diesem Fall ist, wie in vorausgegangenen Messungen untersucht wurde, die Resonanzabsorption sicher zerstört. Während einer Periode der Absorberbewegung blieb der Lautsprecher ausgeschaltet, die Quelle war in Ruhe, die Speicherung des Geschwindigkeitsspektrums erfolgte in den Kanälen 1–128. In der nächstfolgenden Periode wurde der Lautsprecher eingeschaltet, die Resonanzabsorption damit von vornherein zerstört, das so erhaltene Vergleichsspektrum in den Kanälen 129–256 gespeichert. Die An- bzw. Abklingzeit des Lautsprechers lag bei 50 ms, die Periodendauer der Absorberbewegung betrug 250 ms. Um sicherzustellen, daß während der Messung der Lautsprecher stets mit voller Amplitude schwang, bzw. vollständig in Ruhe war, wurde nur die halbe Periode der Absorberbewegung zur Messung verwendet, womit ein genügender Zeitraum zum Ein- und Ausschalten zur Verfügung stand. Das hatte zudem den Vorteil, daß das gesamte Geschwindigkeitsspektrum auf 128 Kanäle verteilt werden konnte, und somit die Geschwindigkeitsauflösung im Mittel bei 1% lag. Die Einschaltung des Registrierkreises während der halben Periode der Absorberbewegung und das Umschalten des Lautsprechers besorgten von Photodioden gesteuerte Schaltkreise. Den Meßfehler erhält man direkt durch Bildung des Quotienten:

$$\varepsilon(k) = [N(k+128)/N(k)] - 1 = \varepsilon(\sin v) \quad (5)$$

als Funktion der Kanalnummer k . Die Zuordnung zwischen Kanalnummer und Absorbergeschwindigkeit ist eine Sinusfunktion, wenn man von den Verzerrungen durch die Nichtlinearität der Diodenstufe absieht. Durch die sinusförmige Verteilung der Geschwindigkeiten wurde außerdem erreicht, daß gerade im interessierenden Teil der hohen Absorbergeschwindigkeiten die Meßpunkte dichter liegen als im bereits mit dem zuerst genannten Verfahren ausgemessenen mittleren Teil des Geschwindigkeitsspektrums.

²² Für die Überlassung der Quelle und des Absorbers habe ich Prof. J. K. MAJOR zu danken.

Zur Bestimmung des $v=0$ entsprechenden Kanals wurde die Transmission der 14,4 keV- γ -Strahlung einer in rostfreiem Stahl eingelagerten Quelle aus Co⁵⁷ durch einen Absorber aus rostfreiem Stahl mit derselben Apparatur gemessen ²². Nach WERTHEIM ²³ hat man in diesem Fall nur eine einzige, zu $v=0$ symmetrische Absorptionslinie zu erwarten.

5. Meßergebnisse

Das Ergebnis der Messung der Hyperfeinstrukturauflösung der 8,42 keV- γ -Strahlung von Tm¹⁶⁹ (Abb. 4) zeigt folgende charakteristische Merkmale:

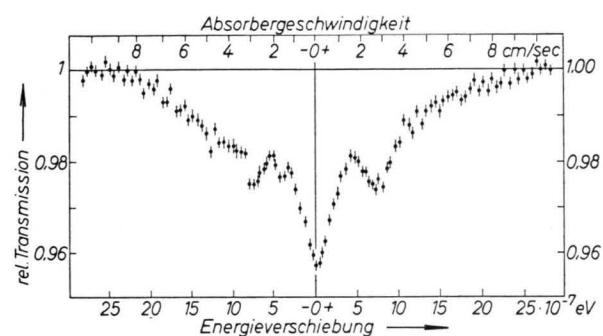


Abb. 4. Relative Transmission der 8,42 keV- γ -Strahlung einer Er₂O₃-Quelle durch einen 13 mg/cm² dicken Resonanzabsorber aus Tm₂O₃ als Funktion der Geschwindigkeit des Absorbers. Auf den RÖNTGEN-Untergrund ist nicht korrigiert, Quelle und Absorber befanden sich auf 300 °K.

a) Das Resonanzabsorptionsspektrum wurde bis 30 cm/sec untersucht. Der Meßfehler betrug etwa 4% maximal, die als Meßfehler angegebene absolute mittlere statistische Schwankung im Bereich bis 12 cm/sec weniger als 10^{-3} , bei höheren Geschwindigkeiten etwa das Doppelte. Innerhalb dieser Fehlergrenze reicht die Resonanzabsorption bis zu Absorbergeschwindigkeiten von $v \approx 9$ cm/sec, was einer Energieverschiebung $\Delta E = 28 \cdot 10^{-7}$ eV entspricht. Es ist dies etwa zwanzigmal die elektronisch gemessene Linienbreite.

b) Die maximale Resonanzabsorption tritt bei ruhendem Absorber auf.

c) Neben einer Hautlinie bei $v=0$ treten zu dieser symmetrisch zwei Linien ungefähr halber Intensität mit Maxima bei $v = \pm 2,9$ cm/sec auf; ihre Breiten betragen jeweils etwa 1,4 cm/sec.

d) Eine weitere, schwächere Linie findet sich bei $v = -1,6$ cm/sec. Das negative Vorzeichen der Ge-

²³ G. K. WERTHEIM, Phys. Rev. Letters 4, 403 [1960].

schwindigkeit bedeutet, daß sich Quelle und Absorber voneinander entfernen. Ein symmetrisches Gegenstück zu dieser Linie bei $v = +1,6 \text{ cm/sec}$ findet sich nicht, es fällt aber auf, daß die Linie bei $v = +2,9 \text{ cm/sec}$ breiter als diejenige bei $v = -2,9 \text{ cm/sec}$ ist.

e) In den übrigen Teilen des Aufspaltungsbildes ist keine Linienstruktur mehr auflösbar. Die Aufspaltung scheint bei positiven Absorbergeschwindigkeiten etwas weiter zu reichen als bei negativen.

6. Diskussion des Aufspaltungsbildes

Betrachten wir zunächst das Aufspaltungsbild oberflächlich, so besteht es aus drei zu $v = 0$ symmetrischen Linien mit den Intensitäten $1 : 2 : 1$. Ein derartiger Verlauf entsteht, wenn Emissions- und Absorptionsspektrum aus je zwei Komponenten mit gleichem Abstand voneinander bestehen, ein Bild, das bei reiner Quadrupolwechselwirkung zu erwarten ist. Der angeregte Zustand mit $I = \frac{3}{2}$ spaltet in diesem Fall in zwei Terme auf, während der Grundzustand mit $I = \frac{1}{2}$ keine Quadrupolaufspaltung zeigen kann. Dies gilt auch, falls der Feldgradient keine Axialsymmetrie besitzt. Die Aufspaltungsenergie mit $2,9 \text{ cm/sec} = 8 \cdot 10^{-7} \text{ eV} = 200 \text{ MHz}$ liegt in dem für Quadrupolwechselwirkung bei Seltenen Erden typischen Bereich.

Die aus den dreiwertigen Ionen der Seltenen Erden aufgebauten Oxydkristalle der Art Me_2O_3 (Me bedeutet hierbei ein Seltenes Erdmetall) bilden alle ein Gitter der Klasse T_h^7 (Mn_2O_3 -Typ). Die Ionen der Seltenen Erden sind dabei an den Ecken und den Mittelpunkten der Flächen eines Würfels eingebaut. Innerhalb dieses von den Ionen der Seltenen Erden gebildeten Würfels liegt ein fast würfförmiges Parallelepiped, an dessen Ecken sich die Sauerstoff-Ionen befinden, jedoch bleiben hierbei zwei sich diagonal gegenüberliegende Eckplätze frei. Der kubische Aufbau des Gitters ist dadurch gestört, ferner hat dies zur Folge, daß sich die flächenzentriert eingebauten Tm-Ionen von den an den Würfecken sitzenden strukturell unterscheiden. Erstere besitzen bekanntlich eine zweizählige Punktsymmetrie (C_2), letztere eine dreizählige und zusätzlich ein Inversionszentrum (C_{3i}). Die Häufigkeit, mit der die Tm(C_2)- gegenüber den Tm(C_{3i})-Plätzen besetzt sind,

verhält sich wie $\frac{3}{4}$ zu $\frac{1}{4}$. Für die Tm-Ionen ist auf beiden Gitterplätzen lediglich die Verteilung der umgebenden Tm-Ionen symmetrisch, nicht jedoch die der Sauerstoff-Ionen. Es existiert daher ein elektrisches Kristallfeld mit einem von Null verschiedenen elektrischen Feldgradienten.

Wie bereits früher³ dargelegt wurde, spaltet der Elektronengrundzustand des freien Tm³⁺-Ions H₆ entsprechend der Punktsymmetrie seines Gitterplatzes durch Wechselwirkung mit dem Kristallfeld auf. Das Tm³⁺-Ion besitzt eine gerade Elektronenzahl, im Falle einer C_2 -Symmetrie wird die $2J+1$ -fache Entartung vollständig aufgehoben. Der Elektronengrundzustand besteht aus 13 Singuletttermen, die der Temperatur entsprechend besetzt sind. Für jeden Singulettterm verschwindet in sehr guter Näherung die magnetische Wechselwirkung am Kernort²⁴. Da bei 300 °K nur die untersten Terme des Elektronengrundzustandes besetzt sind, existiert jedoch am Kernort ein resultierender elektrischer Feldgradient, der mit dem Kernquadrupolmoment in Wechselwirkung tritt.

Die drei charakteristischen Linien des Transmissionsspektrums (s. Abb. 4) lassen sich als Quadrupolaufspaltung des 8,42 keV-Zustande von Tm¹⁶⁹ für die $\frac{3}{4}$ der Tm³⁺-Ionen mit C_2 -Symmetrie deuten (Abb. 5 A). Für diese Ionen ergibt sich dann unter Verwendung eines inneren Quadrupolmomentes von $7,5 \text{ b}$ ²⁵ und unter Berücksichtigung, daß bei C_2 -Symmetrie der Feldgradient nicht axialsymmetrisch ist, für die Komponenten des elektrischen Feldgradienten am Kernort

$$V_{zz}(1 + \frac{1}{3}\eta^2)^{1/2} = 1,1 \cdot 10^{18} \text{ V/cm}^2,$$

dabei ist

$$\eta = (V_{xx} - V_{yy})/V_{zz}$$

der Asymmetrieparameter. Die z-Achse ist die Symmetrieachse, die x-Achse so gelegt, daß $V_{xy} = 0$ ist.

Der Wert für den Feldgradienten ist etwa um einen Faktor 3 kleiner als der, den STANEK⁶ und WAGNER et al.⁷ aus Resonanzabsorptionsmessungen an Er¹⁶⁶ und Yb¹⁷⁰, ebenfalls in Oxydkristalle eingebaut, jedoch bei 20 °K erhielten. Der wesentliche Grund dafür ist wohl, daß bei 300 °K schon höhere Elektronenterme angeregt sind und so eine gewisse Ausmittelung des Feldgradienten erfolgt.

Im Falle des restlichen Viertels der Tm³⁺-Ionen auf Gitterplätzen mit C_{3i} -Symmetrie wird die Ent-

²⁴ V. HEINE, Group Theory in Quantum Mechanics, Pergamon Press, London 1960, p. 158.

²⁵ M. OLESEN u. B. ELBEK, Nucl. Phys. **15**, 134 [1960].

artung des Elektronengrundzustandes nicht vollständig aufgehoben. Neben 5 Singuletttermen treten auch 3 Dubletterme auf, eine magnetische Wechselwirkung mit dem Kern darf dann nicht a priori ausgeschlossen werden. Wie EICHER²⁶ jedoch zeigt, handelt es sich bei den niedrigen, bei Zimmertemperatur vorzugsweise besetzten Elektronentermen um Singulets, ferner sind bei 300 °K die Spin-Gitterrelaxationszeiten sicher so kurz, daß eine magnetische Hyperfeinstrukturauflösung nicht zustande kommen kann. Man darf deshalb auch für die Tm³⁺-Ionen mit C_{3i}-Symmetrie eine Quadrupolwechselwirkung und damit eine Aufspaltung in zwei Emissions- und Absorptionslinien annehmen. Ziehen wir von dem Gesamtspektrum das für die Tm(C₂)-Gitterplätze postulierte Spektrum ab, so verbleibt ein Untergrundspektrum nicht sehr ausgeprägter Struktur, aber mit einer leichten Asymmetrie um $v = 0$, das das Spektrum der Tm(C_{3i})-Ionen sowie das Überlagerungsspektrum der Tm(C_{3i})- und der Tm(C₂)-Ionen enthalten muß. Für die Intensität der beiden Teilspektren gilt:

Emitter	Absorber	Teilspektrum (Abb. 5)	Rel. Intensität
Tm(C ₂)	Tm(C ₂)	A	9/16
Tm(C _{3i})	Tm(C _{3i})	B	1/16
Tm(C ₂)	Tm(C _{3i})	C	6/16
Tm(C _{3i})	Tm(C ₂)		

Tab. 1.

Die Abb. 5 zeigt das nach diesem Konzept zerlegte Transmissionsspektrum. Bezeichnen wir die Größe der Quadrupolaufspaltung für die Tm(C_{3i})-Ionen mit $2a$, die für die Tm(C₂)-Ionen mit $2b$, ferner eine nur für die Tm(C_{3i})-Ionen wirksame Isomerieverschiebung der Linien in der Quelle relativ zu denen im Absorber mit ΔE , so erhält man die beste Übereinstimmung mit der Meßkurve, wenn man folgende Werte ansetzt (Tab. 2):

$$\begin{aligned} 2a &= 6,9 \text{ cm/sec} = 19,3 \cdot 10^{-7} \text{ eV} \\ 2b &= 2,9 \text{ cm/sec} = 8,1 \cdot 10^{-7} \text{ eV} \\ \Delta E &= 0,4 \text{ cm/sec} = 1,1 \cdot 10^{-7} \text{ eV} \end{aligned}$$

Tab. 2.

Der Feldgradient muß für die Tm(C_{3i})-Ionen größer als für die Tm(C₂)-Ionen sein, nur dann läßt sich der über $v = \pm 3 \text{ cm/sec}$ herausgehende

²⁶ H. EICHER, Dissertation, Techn. Hochschule München 1962 (nicht veröffentlicht).

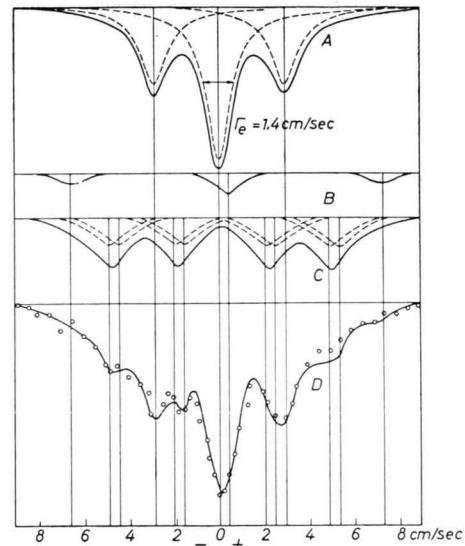


Abb. 5. Zerlegung des in Abb. 4 gezeigten MöSSBAUER-Spektrums. A) MöSSBAUER-Spektrum der Tm-Ionen mit C₂-Symmetrie, B) MöSSBAUER-Spektrum der Tm-Ionen mit C_{3i}-Symmetrie, C) Überlagerungsspektrum der Tm-Ionen mit C₂- und C_{3i}-Symmetrie, D) Summe der Spektren A, B und C mit einigen Meßpunkten.

Anteil der Resonanzabsorption erklären. Unter Verwendung des bereits zitierten Wertes des inneren Quadrupolmomentes von $Q_0 = 7,5 \text{ b}$ ²⁵ erhält man für den elektrischen Feldgradienten am Kernort, der bei C_{3i}-Symmetrie Axialsymmetrie aufweist:

$$V_{zz} = 2,6 \cdot 10^{18} \text{ V/cm}^2.$$

Als Ursache der Isomerieverschiebung kommt nur das unterschiedliche Kristallfeld in Quelle und Absorber in Frage, das demnach zumindest indirekt einen Einfluß auf die s-Elektronendichte am Kernort ausüben muß. Zur Klärung dieser Frage bedarf es jedoch noch weiterer Messungen.

7. Diskussion der Linienbreite

Für die drei aufgelösten Linien des Resonanzabsorptionsspektrums von Tm₂O₃ (Abb. 4) erhält man eine experimentelle Halbwertsbreite $\Gamma_e = 1,4 \text{ cm/s}$. Die natürliche Linienbreite $\Gamma_N = \hbar/\tau$, wobei τ die Lebensdauer des angeregten Zustandes ist, kann aus der Halbwertsbreite der Resonanzkurve streng nicht berechnet werden. Da die Intensität hinter dem Resonanzabsorber I_R als Funktion der relativen DOPPLER-Verschiebung

$$S = v E_0/c \quad (6)$$

(v = Absorbergeschwindigkeit, E_0 = Energie des Übergangs) und der Absorberdicke

$$t_0 = f' n a \sigma_0 \quad (7)$$

(f, f' = DEBYE-WALLER-Faktor der Quelle bzw. des Absorbers, n = Atome/cm², a = Häufigkeit des Isotops, σ_0 = max. Resonanzquerschnitt) beschreibende Transmissionsintegral

$$I_R = I_0 f \left\{ 1 - \left[(\Gamma_N / 2\pi) \int_{+\infty}^{-\infty} \exp \left(-t_0 (\frac{1}{2} \Gamma_N)^2 / (E^2 + (\frac{1}{2} \Gamma_N)^2) \right) dE / ((E + S)^2 + (\frac{1}{2} \Gamma_N)^2) \right] \right\} = I_0 f (1 - P(S, t_0)) \quad (8)$$

ist für $S \neq 0$ nicht lösbar. Bei sehr dünnen Absorbern ergibt der Grenzfall $t \ll 1$ eine LORENTZ-Kurve mit $\Gamma_e = 2 \Gamma_N$. Dieser Fall ist hier nicht erfüllt. Für dickere Absorber erhalten VISSCHER²⁷ sowie MARGULIES und EHRMANN²⁸ durch numerische Integration von (8), daß die Abweichungen der Form der Resonanzkurve von der LORENTZ-Form kleiner als 5% bleiben und für die Halbwertsbreite gesetzt werden kann:

$$\Gamma_e / \Gamma_N = 2,00 + 0,27 t \quad \text{für } 0 \leq t \leq 5. \quad (9)$$

Um diesen Ausdruck auf den vorliegenden Fall anwenden zu können, muß die wirksame Absorberdicke bekannt sein. Diese ist nur dann gleich t_0 , wenn die Resonanzlinie nur aus einer Komponente besteht. Findet dagegen HFS-Aufspaltung statt, so erhält man unter der Voraussetzung, daß in Quelle und Absorber die Aufspaltung gleich ist, eine Summe über mehrere Resonanzlinien, deren relative Intensität mit g_v bezeichnet sei:

$$J_R = \sum_v J_0 f g_v \left(1 - \sum_v P(S, g_v t_0) \right). \quad (10)$$

Ist die Intensität der einzelnen Linien gleich, d. h. $g_1 = g_2 = \dots = g$, so ist die Summation ausführbar:

$$J_R = J_0 f (1 - P(S, g t_0)), \quad (11)$$

und es kann daher eine wirksame Absorberdicke t_e definiert werden:

$$t_e = g \sigma_0 f' n a = g t_0. \quad (12)$$

Ist $g_1 \neq g_2 \neq \dots$, so stellt obiger Ausdruck für nicht zu dicke Absorber eine brauchbare Näherung dar. Kennt man das Aufspaltungsbild, so ist g aus den verschiedenen Überlappungsmöglichkeiten von Emissions- und Absorptionslinie berechenbar.

Unter der vereinfachenden Annahme einer Aufspaltung in nur zwei Linien in Tm₂O₃ (das bedeutet

eine Vernachlässigung der C_{3i}-Gitterplätze) ergibt sich für die wirksame Dicke des 13 mg/cm²-Absorbers²⁹: $t_e = 5$ und somit

$$\Gamma_N = \Gamma_e / 3,3 = 0,43 \text{ cm/sec} = 1,2 \cdot 10^{-7} \text{ eV}$$

oder $\tau = 5,4 \cdot 10^{-9} \text{ sec}$,

was ziemlich genau dem von DEWAARD¹⁴ gemessenen Wert entspricht. Es ist jedoch zu bedenken, daß die Bestimmung der Absorberdicke nur grob ist. Die Messung wurde daher mit einem dünneren Absorber (5 mg/cm² Tm₂O₃) wiederholt. Das Ergebnis (Abb. 6) entspricht prinzipiell der bereits früher erhaltenen Meßkurve, jedoch ist die Breite der mittleren Linie auf $\Gamma_e = 1,1 \text{ cm/sec}$ zurückgegangen. Die Korrektur auf die Absorberdicke liefert ebenfalls $\Gamma_N = 0,43 \text{ cm/sec}$, was die Absorberkorrektur bestätigt.

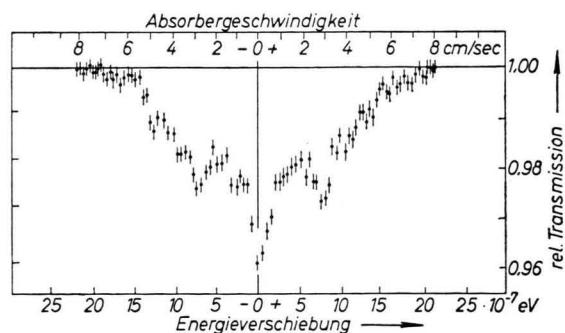


Abb. 6. Relative Transmission der 8,42 keV- γ -Strahlung einer Er₂O₃-Quelle durch einen 5 mg/cm² dicken Resonanzabsorber aus Tm₂O₃ als Funktion der Geschwindigkeit des Absorbers. Auf den RÖNTGEN-Untergrund ist nicht korrigiert, Quelle und Absorber befanden sich auf 300 °K.

Der Wert von $5,4 \cdot 10^{-9} \text{ sec}$ für τ kann nur als obere Grenze angesehen werden, da eine Verbreiterung der Resonanzlinie $\Gamma_e > \Gamma_N$ nicht ausgeschlossen

²⁷ W. VISSCHER, Evaluation of Transmission Integrals, Los Alamos Sci. Lab. (nicht veröffentlicht).

²⁸ S. MARGULIES u. J. R. EHRMANN, Nuclear Instrum. **12**, 131 [1961].

²⁹ Dabei wurde der für eine DEBYE-Temperatur $\Theta_D = 250 \text{ }^\circ\text{K}$ berechnete DEBYE-WALLER-Faktor $f = f' \approx 0,9$ verwendet. Es ist zwar Θ_D von Tm₂O₃ nicht bekannt, jedoch ist infolge der niederen Übergangsgenergie von 8,42 keV der DEBYE-WALLER-Faktor nur wenig von Θ_D abhängig.

sen ist. Eine derartige Verbreiterung würde sich in einer Verringerung des maximalen Resonanzabsorptionsquerschnittes äußern:

$$\sigma_0^* = \sigma_0 \Gamma_N / \Gamma_R. \quad (13)$$

Dem Resonanzquerschnitt proportional muß die gesamte Fläche F_R unter der Transmissionskurve sein. Für eine unaufgespaltene Resonanzlinie ist

$$F_R = \frac{1}{2} \pi R_m \Gamma_e. \quad (14)$$

R_m , die maximale Resonanzabsorption, erhält man aus dem Transmissionsintegral, indem man $S=0$ setzt:

$$R_m = f [1 - \exp(-t_0/2)] I_0(i, t_0/2), \quad (15)$$

wobei I_0 die BESSEL-Funktion nullter Ordnung ist. Γ_e berechnet man bei nicht zu dickem Absorber aus den Gln. (9) und (12). Aus den Meßwerten erhält man die Werte der Tab. 3.

Absorberdicke D	13 mg/cm ²	5 mg/cm ²
Fläche unter der Transmissionskurve F_e	0,25	0,2
experiment. Halbwertsbreite Γ_e	1,4	1,1
Untergrundkorrektur $N_\gamma / (N_\gamma + N_u)$	0,3	0,45 ³⁰
(F_R/Γ_e) exp.	0,55	0,4
(F_R/Γ_e) theor.	1,25	1,1

Tab. 3.

Die als (F_R/Γ_e) theor. bezeichnete Größe wurde unter Benutzung des DEBYE-WALLER-Faktors $f=f'=0,9$ berechnet. Wie man sieht, ist die experimentell bestimmte Resonanzabsorption rund um einen Faktor 2 zu klein. Allerdings muß zur Bestimmung von (F_R/Γ_e) exp. die absolute Resonanzabsorption bekannt sein, das bedeutet, daß in diese Größe die nicht sehr genau auszuführende Untergrundkorrektur eine erhebliche Unsicherheit einbringt. Dennoch liegt die Vermutung nahe, daß die Resonanzlinien tatsächlich verbreitert sind, und somit die Lebensdauer τ des 8,42 keV-Zustandes länger als $5 \cdot 10^{-9}$ sec ist, was auf den von HATCH u. a.¹⁶ gefundenen Wert von 10^{-8} sec hindeutet. Als mögliche Ursache für die Verbreiterung kommt eine in Quelle und Absorber leicht unterschiedliche Aufspaltung wegen des etwas verschiedenen Kristallfeldes in Er₂O₃ gegenüber Tm₂O₃ in Frage.

³⁰ In diesem Fall wurde eine Quelle aus angereichertem Er₂¹⁶⁸O₃ bestrahlt. Dadurch konnten dünnere Quellen verwendet werden. Der RÖNTGEN-Untergrund war geringer, jedoch konnte auch hier die 8,42 keV-Linie nicht eindeutig getrennt werden.

8. Schlußbemerkungen

Zur Klärung der aufgeworfenen ungelösten Fragen ist es sicher wertvoll, die Resonanzabsorption auch bei anderen Temperaturen zu messen; eine Messung bei 20 °K ist in Vorbereitung, man kann in diesem Fall erwarten, daß praktisch nur der unterste Elektronenzustand besetzt ist und daher eindeutigere Feldverhältnisse am Kern herrschen.

Von anderen Verbindungen, die für derartige Messungen in Frage kommen, sind experimentell gut zugänglich noch die reinen Metalle der Seldenen Erden. Diese kristallisieren in hexagonaler Form und haben gegenüber den Oxyden den Vorteil, daß nur ein Typ von Gitterplätzen vorkommt. Vorbereitende Messungen mit einer Metallquelle und einem Metallabsorber wurden durchgeführt. Um die sehr spröden Metalle zu Pulver zu verarbeiten, wurden sie im Vakuum bei 10^{-5} Torr auf eine Glasplatte aufgedampft und die so erzeugte Schicht anschließend mechanisch abgelöst und zerstoßen. Die weitere Verarbeitung erfolgte analog dem bei Oxydpulver angewandten Verfahren. Die Daten für Quelle und Absorber entsprachen denen der bereits besprochenen Messungen, lediglich auf eine Temperierung der Metallquelle mußte, da noch keine geeignete Apparatur zur Verfügung stand, verzichtet werden. Das gemessene Aufspaltungsbild zeigt Abb. 7. Obwohl der statistische Fehler noch ziemlich groß ist, erkennt man doch das Fehlen einer so ausgeprägten Struktur wie bei den Oxyden.

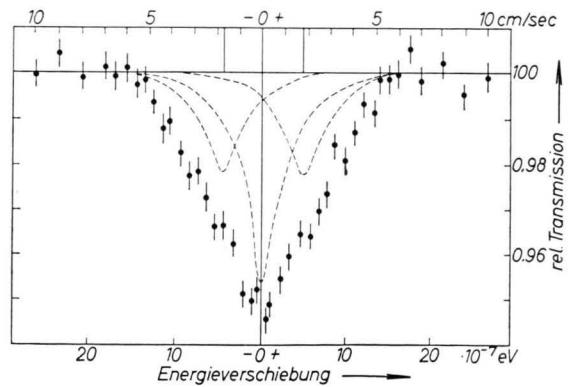


Abb. 7. Relative Transmission der 8,42 keV- γ -Strahlung einer Er-Metallquelle durch einen 12 mg/cm² dicken Resonanzabsorber aus Tm-Metall als Funktion der Geschwindigkeit des Absorbers. Auf den RÖNTGEN-Untergrund ist nicht korrigiert, Quelle und Absorber befanden sich auf 300 °K. Die Zerlegung des Spektrums ist gestrichelt eingezzeichnet.

Die Transmissionskurve kann bei Verwendung einer Linienbreite $\Gamma_e = 1,7$ cm/sec als Aufspaltungs-

bild einer reinen Quadrupolwechselwirkung gedeutet werden, die Wechselwirkungsenergie beträgt dann:

$$W_{\text{el}}^{\text{Met}} \approx 1,9 \text{ cm/sec} = 5 \cdot 10^{-7} \text{ eV.}$$

Offenbar sind die Felder am Kernort hier noch schlechter definiert. Dies kann einerseits auf die unterlassene Temperierung zurückzuführen sein, andererseits scheint ein Vakuum von 10^{-5} Torr noch keine gut ausgeprägten Kristallstrukturen zu liefern³¹, so

³¹ M. AUWÄRTER, Ergebnisse der Hochvakuumtechnik und der Physik dünner Schichten, Wiss. Verlagsges., Stuttgart 1957.

dass hier nach anderen Verfahren gesucht werden muß.

Herrn Prof. Dr. H. MAIER-LEIBNITZ möchte ich sehr herzlich danken für die Anregung zu dieser Arbeit sowie für sein stetes Interesse, das er ihr in allen Stadien entgegenbrachte. Mein besonderer Dank gilt weiterhin Herrn Dr. P. KIENLE für die gute Zusammenarbeit. Für mannigfache Diskussionen habe ich vor allem den Herren H. EICHER, Dr. K. BÖCKMANN und Prof. Dr. J. K. MAJOR zu danken. Für ihre Mithilfe bei den wochenlangen ununterbrochenen Meßserien bin ich den Herren D. DORNIER, Dr. O. SCHULT, H. HOHMANN, Dr. F. STANEK, F. WUNDERLICH und R. KOCH zu Dank verpflichtet. Herr G. SCHNELL half mir beim Bau der Meßapparatur.

Zur Temperatur der Sonnenkorona

Von REIMAR LÜST, FRIEDRICH MEYER, ELEONORE TREFFTZ * und LUDWIG BIERMANN

Aus dem Max-Planck-Institut für Physik und Astrophysik, München
(Z. Naturforsch. 17 a, 259—266 [1962]; eingegangen am 31. Januar 1962)

Herrn Professor W. HEISENBERG zum 60. Geburtstag gewidmet

In connection with the problem of the temperature of the solar corona the energy loss of the electrons due to free-free, free-bound, and bound-bound radiation is discussed and calculated. It is shown that these energy losses are by far too small to account for a factor of two between the apparent temperature of the ions and electrons. Therefore, in the second part, it is assumed that these two temperatures are equal and that the observed density gradient and the observed line-widths of the ions are strongly influenced by the shockwaves in the solar corona. In a simplified model (isothermal atmosphere and isothermal shockwaves) the exerted pressure of these shockwaves is calculated and it is shown that shockwaves may influence the scale height of the atmosphere considerably.

Bekanntlich wird die Temperatur der Sonnenkorona je nachdem, welches Meßverfahren angewandt wird, verschieden hoch bestimmt. Die DOPPLER-Breite der sichtbaren Spektrallinien zeigt eine ungeordnete Bewegung der Ionen, die einer Temperatur von etwa $1,6 \cdot 10^6$ °K entspricht. Damit läßt sich der beobachtete Dichtegradient der Korona in diesem Gebiet in Einklang bringen¹.

Die Beobachtungen der Radiostrahlung der ruhigen Sonne sprechen ebenfalls für eine Temperatur oberhalb von 10^6 °K, jedoch sind die Unsicherheiten der Temperaturbestimmung aus den bisherigen Daten noch sehr groß². Neuere Bestimmungen auf Grund von Radar-Reflexionen an der Sonnenkorona³ führten dagegen auf eine Elektronentemperatur um

500 000 °. Auch aus dem Ionisationsgleichgewicht der Elemente ergibt sich eine Elektronentemperatur von nur $0,8 \cdot 10^6$ °K.

Um 1950 ist nämlich gezeigt worden (BIERMANN⁴, WOOLLEY und ALLEN⁵, MIYAMOTO⁶ und insbesondere ELWERT⁷), daß in der Sonnenkorona das Ionisationsgleichgewicht hauptsächlich bestimmt wird durch Elektronenstoßionisation einerseits und Strahlungsrekombination andererseits. Das Ionisationsgleichgewicht ist korreliert mit der mittleren Geschwindigkeit der Elektronen. Man bestimmt daraus also eine Elektronentemperatur.

In die Rechnung gehen die Ionisationsquerschnitte der Ionen gegenüber Elektronenstoß ein. ELWERT benutzt eine Näherungsformel für die Querschnitte,

³ W. G. ABEL, J. H. CHRISHOLM, P. L. FLECK u. J. C. JAMES, J. Geophys. Res. 66, 4303 [1961].

⁴ L. BIERMANN, Naturwiss. 34, 87 [1947].

⁵ R. v. d. R. WOOLLEY u. C. W. ALLEN, Mon. Not. Roy. Astr. Soc. 108, 292 [1948].

⁶ S. MIYAMOTO, Publ. Astronom. Soc., Japan 1, 10 [1949].

⁷ G. ELWERT, Z. Naturforschg. 7 a, 432 [1952].

* Zur Zeit University College London, Physics Dep., Gower St., London W.C. 1.

¹ C. DE JAGER, Modèles d'Etoiles et Evolution Stellaire, Soc. Roy. Sci. Liège, Série 5, Tome III (1959), Handb. d. Physik 52, p. 80, Springer-Verlag, Berlin 1959.

² U. UNSÖLD, Z. Astrophys. 50, 48, 57 [1960].