

– (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  $Rh^{104}$  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>.

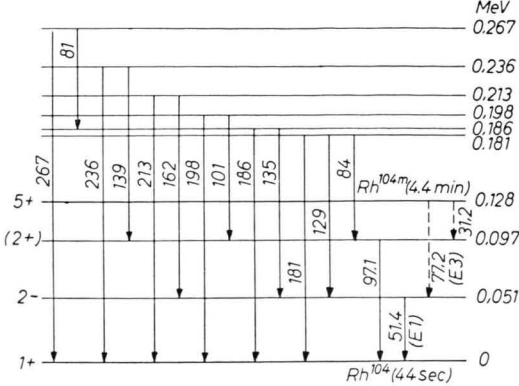


Abb. 7. Ergänztas Termschema von  $Rh^{104}$ .

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  $Rh^{104m}$ -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 $Tm^{169}$ durch den Mößbauer-Effekt in $Tm_2O_3$

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  $Tm^{169}$  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  $Tm^{169}$  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:

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

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].



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 digitalized 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 Kernniveaus<sup>2</sup> 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  $\gamma$ -Linien kann diese Wechselwirkungsenergie vergleichbar mit der Linienbreite werden, man beobachtet dann eine Verbreiterung, in günstigen Fällen auch eine Aufspaltung der  $\gamma$ -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 Hüllfeld 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 Unterzustände vollständig. In der Eisengruppe ist die Aufspaltung des Hüllengrundzustandes mit etwa  $5000 \text{ cm}^{-1}$  so groß, daß selbst bei Zimmertemperatur praktisch nur das unterste Niveau besetzt ist. Dagegen ist diese Aufspaltung bei den Seltenen Erden mit  $300 \text{ cm}^{-1}$  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- $\gamma$ -Linie von  $\text{Fe}^{57}$  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 absorbiierter 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- $\gamma$ -Linie von  $\text{Fe}^{57}$ . 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

<sup>2</sup> E. COTTON, J. Phys. Radium **21**, 265 [1960].

der vorliegenden Arbeit wird die Hyperfeinstrukturaufspaltung der 8,42 keV- $\gamma$ -Linie von  $\text{Tm}^{169}$ , eingebaut in den Oxydkristall, bei Zimmertemperatur beschrieben. Entsprechende Messungen im Gebiet der Seltenen Erden liegen außer für das Isotop  $\text{Tm}^{169}$  (s. Anm. <sup>3, 4</sup>) bisher nur bei tiefen Temperaturen (26 keV- $\gamma$ -Linie von  $\text{Dy}^{161}$  bei 80 °K <sup>5</sup>, 80,6 keV- $\gamma$ -Linie von  $\text{Er}^{166}$  bei 20 °K <sup>6</sup>, 84 keV- $\gamma$ -Linie von  $\text{Yb}^{170}$  bei 20 °K <sup>7</sup>) vor. Neben  $\text{Fe}^{57}$  ist  $\text{Tm}^{169}$  der einzige bisher bekannte Fall, wo rückstoßfreie Kernresonanzabsorption bei Zimmertemperatur und höheren Temperaturen <sup>8a</sup> nachgewiesen werden konnte. Aus diesem Grund eignet sich  $\text{Tm}^{169}$  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 <sup>8b</sup> und unterhalb 20 °K ferromagnetisch <sup>8c</sup> sein soll.

### 1. Das 8,42 keV-Niveau in $\text{Tm}^{169}$

Die genaue energetische Lage mit 8,42 keV sowie den Spin von  $I = \frac{3}{2}$  des ersten angeregten Kernzustandes von  $\text{Tm}^{169}$  legten HATCH et al. <sup>9</sup> durch Untersuchung des Konversionselektronenspektrums von  $\text{Tm}^{169}$  fest. Der M1-Übergang zum Grundzustand  $I = \frac{1}{2}$  <sup>10</sup> besitzt eine E2-Beimischung  $< 10^{-10}$ . Mit 8,42 keV liegt das erste angeregte Niveau energetisch unterhalb der L<sub>III</sub>-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 <sup>12</sup>  $\alpha_{M+N} = 106$  beträgt. Dennoch bereitet der direkte Nachweis der 8,42 keV- $\gamma$ -Strahlung Schwierigkeiten <sup>13</sup>, da diese inmitten der Tm L-RÖNTGEN-Strahlung ( $\text{Tm}_{L\alpha 1} = 7,18$  keV,  $\text{Tm}_{L\gamma 1} = 9,42$  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 <sup>14</sup>. Neuere Messungen von BLECHSCHMIDT et al. <sup>15</sup> ergaben in guter Übereinstimmung  $T_{1/2} = (3,24 \pm 0,17) \cdot 10^{-9}$  sec, wohingegen HATCH et al. <sup>16</sup> 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- $\gamma$ -Strahlung kommen sowohl  $\text{Yb}^{169}$  als auch  $\text{Er}^{169}$  in Betracht. Beide Isotope lassen sich bequem durch Neutroneneinfang in einem Reaktor herstellen.  $\text{Yb}^{169}$  zerfällt durch K-Einfang in  $\text{Tm}^{169}$  und weist mit 33 Tagen <sup>17</sup> 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  $\text{Er}^{169}$  ( $T_{1/2} = 9$  d) <sup>13</sup> gewählt, obwohl sich hiermit nur eine geringe spezifische Aktivität erzeugen läßt. Ferner ist nachteilig, daß die L<sub>III</sub>-Absorptionskante in Er mit 8,36 keV unterhalb 8,42 keV liegt. Der Photoabsorptionsquerschnitt ist somit beim Er für 8,42 keV- $\gamma$ -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%  $\text{Er}^{168}$  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/cm<sup>2</sup> sec. Die Bestrahlungsdauer betrug drei Wochen, die erzielte spezifische Aktivität rund 0,5 mC/mg. An langlebiger Fremdaktivität entsteht vorzugsweise als Folgeprodukt von  $\text{Er}^{171}$  ( $T_{1/2} = 7,8$  h)  $\text{Tm}^{171}$  ( $T_{1/2} = 1,9$  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 Scheibchen von 20 mm  $\phi$  und mit einem Flächengewicht von 3 mg/cm<sup>2</sup> entstanden. Die Quelle wurde fest zwischen zwei Polystyrolscheiben mit einer Dicke von 200 mg/cm<sup>2</sup>

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

<sup>4</sup> R. L. COHEN, U. HAUSER u. R. L. MÖSSBAUER, Bull. Amer. Phys. Soc. Ser. II, **6**, 364 [1961].

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

<sup>6</sup> F. W. STANEK, Z. Phys. **166**, 6 [1962].

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

<sup>8a</sup> 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).

<sup>8b</sup> F. H. SPEDDING, Progress in Low Temperature Physics, Bd. II, S. 390, Amsterdam 1957.

<sup>8c</sup> H. LEIPFINGER, Z. Phys. **150**, 415 [1958].

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

<sup>10</sup> K. H. LINDENBERGER, Z. Phys. **141**, 476 [1955].

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

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

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

<sup>14</sup> H. BEEKHUIS u. H. DE WAARD, Physica **24**, 767 [1958].

<sup>15</sup> H. BLECHSCHMIDT, J. CHRISTIANSEN u. H. P. HERMSEN, vorge-tragen auf der Physiker-Tagung Wien, Oktober 1961.

<sup>16</sup> E. N. HATCH, U. SCHNEIDER, K. RUNGE u. W. KERLER, vorge-tragen auf der Physiker-Tagung Wien, Oktober 1961.

<sup>17</sup> W. BOTHE, Z. Naturforschg. **1**, 173 [1946].

montiert. Die Kunststoffscheiben dienten gleichzeitig als Elektronenabsorber, sie mußten so dick gewählt werden, weil neben den  $\beta$ -Strahlen des  $\text{Er}^{169}$  ( $E_{\beta_{\text{max}}} \approx 0,33$  MeV) auch noch die  $\beta$ -Teilchen der Verunreinigung an  $\text{Tm}^{170}$  mit  $E_{\beta_{\text{max}}} \approx 1$  MeV auftreten (s. auch Abschn. 3).

Die Absorber bestanden aus Thulium-Oxydpulver, das nach einem von FODOR und COHEN<sup>18</sup> angegebenen Verfahren auf einer 30 mg/cm<sup>2</sup> 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 Vorversuchen Werte zwischen 10 und 15 mg/cm<sup>2</sup>. Für die Hauptmessung wurde ein 13 mg/cm<sup>2</sup> starker  $\text{Tm}_2\text{O}_3$ -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  $\gamma$ -Linie eingestellten Einkanaldiskriminators verringern, jedoch ist gerade bei niedrigen  $\gamma$ -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  $\text{Tm}^{169}$  die 8,42 keV- $\gamma$ -Linie von RÖNTGEN-Strahlung überdeckt wird.

Wie man aus Abb. 1, die das vom Argonproportionalzählrohr gelieferte Impulshöhenspektrum zeigt,

entnimmt, wird vom Zählrohr eine einzige breite Linie mit einem Maximum bei 7,7 keV nachgewiesen. Eine Struktur im  $\gamma$ -Spektrum bei 8,42 keV zeigt sich nicht, die Untergrundstrahlung muß also mindestens aus einer der  $\gamma$ -Strahlung eng benachbarten etwas niederenergetischeren Linie von ungefähr derselben Intensität bestehen. Als Ursache kommt mit hoher Wahrscheinlichkeit nur L-RÖNTGEN-Strahlung in Betracht, da  $\gamma$ -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.

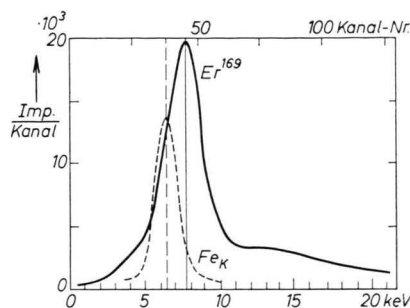


Abb. 1. Vom Argonproportionalzählrohr geliefertes  $\gamma$ -Spektrum der  $\text{Er}_2\text{O}_3$ -Quelle. Zum Vergleich ist die Eisen K-RÖNTGEN-Linie ebenfalls eingezeichnet.

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) $\gamma$ -Spektrum im Argonproportionalzählrohr

Sowohl die frische als auch die abgelagerte Quelle zeigen im wesentlichen dasselbe Spektrum. Die Linie ist bei der abgelagerten Quelle etwas schmalere, 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 Proportionalzählrohr gelieferten breiten Linie bestimmt. Die Halbwertszeit entsprach mit  $8,75 \pm 0,6$  d innerhalb des Fehlerbereiches der vom  $\text{Er}^{169}$ . Bei der abgeklungenen Quelle wurde aus Intensitätsgründen die Abnahme der  $\beta$ -Aktivität mit einem Methandurchflußzählrohr gemessen. Das Ergebnis, eine Halbwertszeit von  $138 \pm 10$  d, läßt sich  $\text{Tm}^{170}$  zuordnen.

<sup>18</sup> G. FODOR u. B. L. COHEN, Rev. Sci. Instrum. **31**, 73 [1960].



c) *Bestimmung der maximalen  $\beta$ -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  $\text{Er}^{169}$ , die hochenergetische  $\text{Tm}^{170}$  zugeordnet werden; die abgelagerte Quelle zeigt nur noch die hochenergetische Komponente.

Zusammenfassend ist zu sagen, daß als langlebige Fremddaktivität nur  $\text{Tm}^{170}$  nachzuweisen war, welches durch Neutroneneinfang in  $\text{Tm}^{169}$  entsteht. Die Fremddaktivität ist jedoch zu hoch, um bei ca.  $10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$  durch Doppeleinfang aus  $\text{Er}^{168}$  zu entstehen.  $\text{Tm}^{169}$  muß also bereits als Verunreinigung (ca.  $0,5^{0/00} \text{ Tm}_2\text{O}_3$ ) im Erbiumoxyd enthalten sein.

Die als Folgeprodukt des Neutroneneinfangs in  $\text{Er}^{170}$  entstehende Aktivität an  $\text{Tm}^{171}$  ist wegen dessen langer Halbwertszeit gering. Ferner gehen beim Zerfall des  $\text{Tm}^{171}$  98% der Zerfälle in den Grundzustand von  $\text{Yb}^{171}$  über, hingegen wird in  $\text{Yb}^{170}$  der erste angeregte Zustand bei 24% der Zerfälle besetzt. Ein Nachweis der Elektronenaktivität des  $\text{Tm}^{171}$  war infolge der niedrigen Maximalenergie von nur 0,098 MeV mit der hier beschriebenen Anordnung nicht möglich. Es konnte aber die 67 keV- $\gamma$ -Strahlung von  $\text{Tm}^{171}$  in dem mit einem Xenonproportionalzählrohr aufgenommenen  $\gamma$ -Spektrum der abgelagerten Er-Quelle nachgewiesen werden.

Diese beiden Fremddaktivitäten liefern infolge Konversion ihrer  $\gamma$ -Linien Yb-L-RÖNTGEN-Strahlung. Eine Abschätzung der Intensität so erzeugter Strahlung auf Grund der bekannten Zerfallsdaten<sup>19</sup> liefert  $I_L(\text{Yb})/I_\gamma(8,42) \leq 0,1$ .

Die Untergrundstrahlung kann somit nicht allein von den Verunreinigungen an  $\text{Tm}^{170}$  und  $\text{Tm}^{171}$  herrühren. Tm-L-Strahlung kommt als Untergrund nicht in Betracht. Die einzige als Verunreinigung mögliche Aktivität, die eine derartige Strahlung liefern würde, ist  $\text{Yb}^{169}$ , jedoch konnten im Szintillationsspektrum der Er-Quelle keine für dieses Isotop typischen  $\gamma$ -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  $\text{Er}^{169}$

herrührenden  $\beta$ -Teilchen, zum anderen durch Photo-selbstabsorption der 8,42 keV- $\gamma$ -Strahlung in der Quelle entstehen. Die Intensität der durch Selbstabsorption entstehenden RÖNTGEN-Strahlung läßt sich zu  $(I_L/I_\gamma)_{\text{SA}} = 0,2$  abschätzen. Die durch Elektronenstoß erzeugte Intensität anzugeben, ist schwieriger. Nach MASSEY und BURHOP<sup>20</sup> 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  $\gamma$ -Linie (Abb. 1) den darin enthaltenen Anteil an 8,42 keV-Strahlung roh abschätzen. Diese Zerlegung des  $\gamma$ -Spektrums zeigt die Abb. 2. Dort ist ebenfalls die Lage des ausgeblendeten Meßkanals eingezeichnet. In ihm beträgt demnach der Anteil an 8,42 keV- $\gamma$ -Strahlung ungefähr 30%.

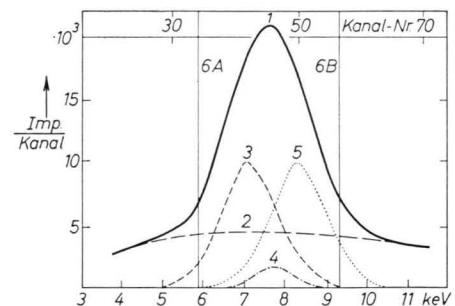


Abb. 2. Zerlegung der  $\gamma$ -Linie um 8 keV der  $\text{Er}_2\text{O}_3$ -Quelle. 1. Vom Argonproportionalzählrohr geliefertes  $\gamma$ -Spektrum. 2. Kontinuierlicher Untergrund. 3. Er-L-Röntgen-Linie. 4. Tm-L-Röntgen-Linie. 5. 8,42 keV- $\gamma$ -Linie. (6A, 6B) Grenzen der bei der Messung benutzten 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-

<sup>19</sup> Nuclear Data Sheets, Nat. Res. Council. 59-2-73, [1959].

<sup>20</sup> 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.

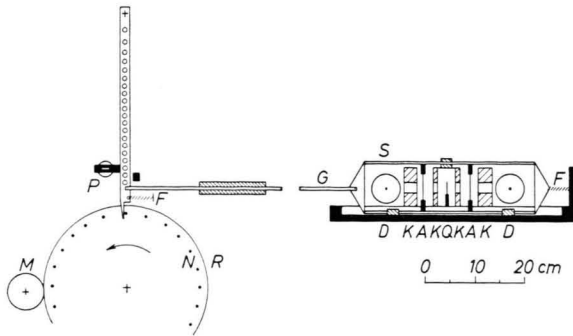


Abb. 3. Apparatur zur Erzeugung konstanter DOPPLER-Geschwindigkeit zwischen Quelle Q und Absorber A. R Eisenrad mit Nocken N; M Antrieb; P Photoelektrische Steuerung; F Rückholfeder; G Übertragungsgestänge; S Absorberschlitten; D Proportionalzählrohre; K Kollimatoren.

Zur Erzeugung der konstanten Absorbergeschwindigkeit diente die in Abb. 3 gezeigte Anordnung: Ein schweres Eisenrad von 320 mm  $\phi$  wurde von einem laufruhigen 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  $\frac{1}{24}$  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 Gesamt- abstand 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 betätigte 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 Geschwindigkeitsschwankungen 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 Schwankungen 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 Schwankungen der Elektronik unabhängig wird. Es wurde in den unterschiedlichsten Anordnungen auch von anderer Seite benutzt<sup>21</sup>. Die Erzeugung der Sinusbewegung erfolgte mechanisch mit einem von einem Synchronmotor angetriebenen Kurbeltrieb. 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  $\gamma$ -Quant liefert, sofern es in den von dem Einkanal diskriminator ausgeblendeten 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 diskriminator analysiert. Zur Erzeugung der Sägezahnspannung diente der Kippgenerator eines Tektro-

<sup>21</sup> 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 Meßeffect 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.

Zur Bestimmung des  $v=0$  entsprechenden Kanals wurde die Transmission der 14,4 keV- $\gamma$ -Strahlung einer in rostfreien Stahl eingelagerten Quelle aus  $\text{Co}^{57}$  durch einen Absorber aus rostfreiem Stahl mit derselben Apparatur gemessen<sup>22</sup>. Nach WERTHEIM<sup>23</sup> hat man in diesem Fall nur eine einzige, zu  $v=0$  symmetrische Absorptionslinie zu erwarten.

## 5. Meßergebnisse

Das Ergebnis der Messung der Hyperfeinstrukturaufspaltung der 8,42 keV- $\gamma$ -Strahlung von  $\text{Tm}^{169}$  (Abb. 4) zeigt folgende charakteristische Merkmale:

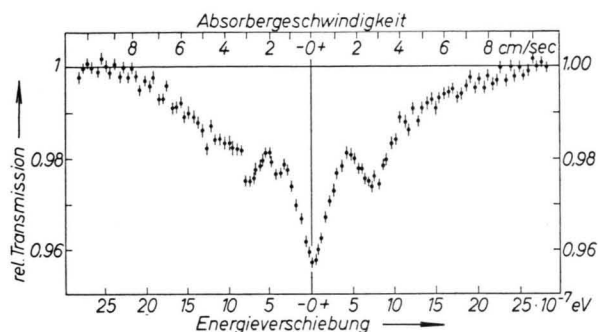


Abb. 4. Relative Transmission der 8,42 keV- $\gamma$ -Strahlung einer  $\text{Er}_2\text{O}_3$ -Quelle durch einen 13 mg/cm<sup>2</sup> dicken Resonanzabsorber aus  $\text{Tm}_2\text{O}_3$  als Funktion der Geschwindigkeit des Absorbers. Auf den RÖNTGEN-Untergrund ist nicht korrigiert, Quelle und Absorber befanden sich auf 300 °K.

a) Das Resonanzabsorptionsspektrum wurde bis 30 cm/sec untersucht. Der Meßeffect 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-

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

<sup>23</sup> 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  $v = +1,6$  cm/sec findet sich nicht, es fällt aber auf, daß die Linie bei  $v = +2,9$  cm/sec breiter als diejenige bei  $v = -2,9$  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  $2,9$  cm/sec  $= 8 \cdot 10^{-7}$  eV  $= 200$  MHz liegt in dem für Quadrupolwechselwirkung bei Seltenen Erden typischen Bereich.

Die aus den dreiwertigen Ionen der Seltenen Erden aufgebauten Oxydkristalle der Art  $\text{Me}_2\text{O}_3$  (Me bedeutet hierbei ein Seltenes Erdmetall) bilden alle ein Gitter der Klasse  $T_h$ <sup>7</sup> ( $\text{Mn}_2\text{O}_3$ -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 würfelförmiges 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 Würfелеcken 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( $C_{3i}$ )-Plätze 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 früher<sup>3</sup> dargelegt wurde, spaltet der Elektronengrundzustand des freien Tm<sup>3+</sup>-Ions  $H_6$  entsprechend der Punktsymmetrie seines Gitterplatzes durch Wechselwirkung mit dem Kristallfeld auf. Das Tm<sup>3+</sup>-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 Kernort<sup>24</sup>. 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 Transmissionspektrums (s. Abb. 4) lassen sich als Quadrupolaufspaltung des 8,42 keV-Zustandes von Tm<sup>169</sup> für die  $\frac{3}{4}$  der Tm<sup>3+</sup>-Ionen mit  $C_2$ -Symmetrie deuten (Abb. 5 A). Für diese Ionen ergibt sich dann unter Verwendung eines inneren Quadrupolmomentes von  $7,5 \text{ b}$ <sup>25</sup> 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 STANEK<sup>6</sup> und WAGNER et al.<sup>7</sup> aus Resonanzabsorptionsmessungen an Er<sup>166</sup> und Yb<sup>170</sup>, 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 Ausmittlung des Feldgradienten erfolgt.

Im Falle des restlichen Viertels der Tm<sup>3+</sup>-Ionen auf Gitterplätzen mit  $C_{3i}$ -Symmetrie wird die Ent-

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

<sup>25</sup> 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 EICHER<sup>26</sup> jedoch zeigt, handelt es sich bei den niedrigen, bei Zimmertemperatur vorzugsweise besetzten Elektronentermen um Singuletts, ferner sind bei 300 °K die Spin-Gitterrelaxationszeiten sicher so kurz, daß eine magnetische Hyperfeinstrukturaufspaltung nicht zustande kommen kann. Man darf deshalb auch für die Tm<sup>3+</sup>-Ionen mit C<sub>3i</sub>-Symmetrie eine Quadrupolwechselwirkung und damit eine Aufspaltung in zwei Emissions- und Absorptionslinien annehmen. Ziehen wir von dem Gesamtspektrum das für die Tm(C<sub>2</sub>)-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<sub>3i</sub>)-Ionen sowie das Überlagerungsspektrum der Tm(C<sub>3i</sub>)- und der Tm(C<sub>2</sub>)-Ionen enthalten muß. Für die Intensität der beiden Teilspektren gilt:

Emitter	Absorber	Teilspektrum (Abb. 5)	Rel. Intensität
Tm(C <sub>2</sub> )	Tm(C <sub>2</sub> )	A	9/16
Tm(C <sub>3i</sub> )	Tm(C <sub>3i</sub> )	B	1/16
Tm(C <sub>2</sub> )	Tm(C <sub>3i</sub> )	C	6/16
Tm(C <sub>3i</sub> )	Tm(C <sub>2</sub> )		

Tab. 1.

Die Abb. 5 zeigt das nach diesem Konzept zerlegte Transmissionsspektrum. Bezeichnen wir die Größe der Quadrupolaufspaltung für die Tm(C<sub>3i</sub>)-Ionen mit  $2a$ , die für die Tm(C<sub>2</sub>)-Ionen mit  $2b$ , ferner eine nur für die Tm(C<sub>3i</sub>)-Ionen wirksame Isomeriewerschiebung der Linien in der Quelle relativ zu denen im Absorber mit  $\Delta E$ , 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<sub>3i</sub>)-Ionen größer als für die Tm(C<sub>2</sub>)-Ionen sein, nur dann läßt sich der über  $v = \pm 3 \text{ cm/sec}$  herausgehende

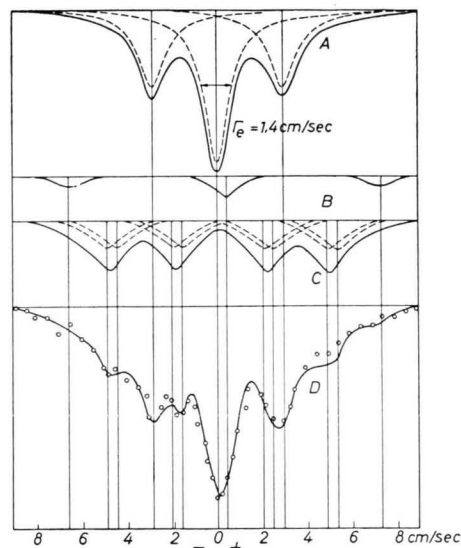


Abb. 5. Zerlegung des in Abb. 4 gezeigten Mössbauer-Spektrums. A) Mössbauer-Spektrum der Tm-Ionen mit C<sub>2</sub>-Symmetrie, B) Mössbauer-Spektrum der Tm-Ionen mit C<sub>3i</sub>-Symmetrie, C) Überlagerungsspektrum der Tm-Ionen mit C<sub>2</sub>- und C<sub>3i</sub>-Symmetrie, D) Summe der Spektren 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<sub>3i</sub>-Symmetrie Axialsymmetrie aufweist:

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

Als Ursache der Isomeriewerschiebung 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 Tm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Abb. 4) erhält man eine experimentelle Halbwertsbreite  $\Gamma_e = 1,4 \text{ cm/s}$ . Die natürliche Linienbreite  $\Gamma_N = \hbar/\tau$ , wobei  $\tau$  die Lebensdauer des angeregten Zustandes ist, kann aus der Halbwertsbreite der Resonanzkurve streng nicht berechnet werden. Das die Intensität hinter dem Resonanzabsorber  $I_R$  als Funktion der relativen DOPPLER-Verschiebung

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

<sup>26</sup> H. EICHER, Dissertation, Techn. Hochschule München 1962 (nicht veröffentlicht).

( $v$  = 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/cm<sup>2</sup>,  $a$  = Häufigkeit des Isotops,  $\sigma_0$  = max. Resonanzquerschnitt) beschreibende Transmissionsintegral

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

ist für  $S \neq 0$  nicht lösbar. Bei sehr dünnen Absorbieren 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 VISSCHER<sup>27</sup> sowie MARGULIES und EHLMANN<sup>28</sup> 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  $g_\nu$  bezeichnet sei:

$$J_R = \sum_\nu J_0 f g_\nu \left( 1 - \sum_\nu P(S, g_\nu t_0) \right). \quad (10)$$

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 Tm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (das bedeutet

eine Vernachlässigung der C<sub>3i</sub>-Gitterplätze) ergibt sich für die wirksame Dicke des 13 mg/cm<sup>2</sup>-Absorbers<sup>29</sup>:  $t_e = 5$  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 DEWAARD<sup>14</sup> 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/cm<sup>2</sup> Tm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 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.

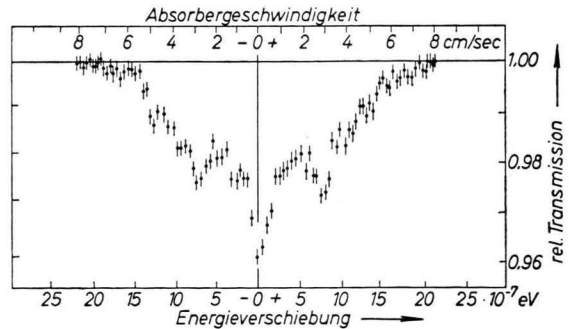


Abb. 6. Relative Transmission der 8,42 keV- $\gamma$ -Strahlung einer Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Quelle durch einen 5 mg/cm<sup>2</sup> dicken Resonanzabsorber aus Tm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> als Funktion der Geschwindigkeit des Absorbers. Auf den RÖNTGEN-Untergrund ist nicht korrigiert, Quelle und Absorber befanden sich auf 300 °K.

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

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

<sup>28</sup> S. MARGULIES u. J. R. EHLMANN, Nuclear Instrum. **12**, 131 [1961].

<sup>29</sup> Dabei wurde der für eine DEBYE-Temperatur  $\Theta_D = 250 \text{ °K}$  berechnete DEBYE-WALLER-Faktor  $f = f' \approx 0,9$  verwendet. Es ist zwar  $\Theta_D$  von Tm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nicht bekannt, jedoch ist infolge der niederen Übergangsenergie von 8,42 keV der DEBYE-WALLER-Faktor nur wenig von  $\Theta_D$  abhängig.

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

$$\sigma_0^* = \sigma_0 I_N / I_R. \quad (13)$$

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

$$F_R = \frac{1}{2} \tau R_m I_e. \quad (14)$$

$R_m$ , 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.  $I_e$  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 <sup>2</sup>	5 mg/cm <sup>2</sup>
Fläche unter der Transmissionskurve $F_e$	0,25	0,2
experiment. Halbwertsbreite $\Gamma_e$	1,4	1,1
Untergrundkorrektur $N_\gamma/(N_\gamma + N_u)$	0,3	0,45 <sup>30</sup>
$(F_R/I_e)_{\text{exp.}}$	0,55	0,4
$(F_R/I_e)_{\text{theor.}}$	1,25	1,1

Tab. 3.

Die als  $(F_R/I_e)_{\text{theor.}}$  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  $(F_R/I_e)_{\text{exp.}}$  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  $\tau$  des 8,42 keV-Zustandes länger als  $5 \cdot 10^{-9}$  sec ist, was auf den von HATCH u. a.<sup>16</sup> 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 Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub> gegenüber Tm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in Frage.

<sup>30</sup> In diesem Fall wurde eine Quelle aus angereichertem Er<sub>2</sub><sup>168</sup>O<sub>3</sub> 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 eindeutige Feldverhältnisse am Kern herrschen.

Von anderen Verbindungen, die für derartige Messungen in Frage kommen, sind experimentell gut zugänglich noch die reinen Metalle der Seltenen 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 Temperung 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.

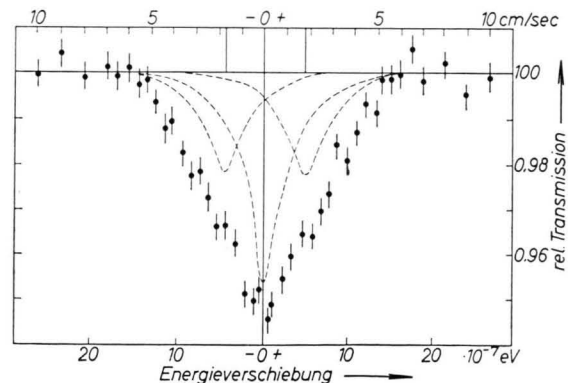


Abb. 7. Relative Transmission der 8,42 keV- $\gamma$ -Strahlung einer Er-Metallquelle durch einen 12 mg/cm<sup>2</sup> dicken Resonanzabsorber aus Tm-Metall als Funktion der Geschwindigkeit des Absorbers. Auf den RÖNTGEN-Untergrund ist nicht korrigiert, Quelle und Absorber befanden sich auf 300 °K. Die Zerlegung des Spektrums ist gestrichelt eingezeichnet.

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 Temperung zurückzuführen sein, andererseits scheint ein Vakuum von  $10^{-5}$  Torr noch keine gut ausgeprägten Kristallstrukturen zu liefern<sup>31</sup>, so

<sup>31</sup> 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. Naturforschg. 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 bringen<sup>1</sup>.

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 groß<sup>2</sup>. Neuere Bestimmungen auf Grund von Radar-Reflexionen an der Sonnenkorona<sup>3</sup> 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 (BIERMANN<sup>4</sup>, WOOLLEY und ALLEN<sup>5</sup>, MIYAMOTO<sup>6</sup> und insbesondere ELWERT<sup>7</sup>), 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,

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

<sup>1</sup> 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.

<sup>2</sup> U. UNSÖLD, Z. Astrophys. 50, 48, 57 [1960].

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

<sup>4</sup> L. BIERMANN, Naturwiss. 34, 87 [1947].

<sup>5</sup> R. v. D. R. WOOLLEY u. C. W. ALLEN, Mon. Not. Roy. Astr. Soc. 108, 292 [1948].

<sup>6</sup> S. MIYAMOTO, Publ. Astronom. Soc., Japan 1, 10 [1949].

<sup>7</sup> G. ELWERT, Z. Naturforschg. 7 a, 432 [1952].