

# Messung der anisotropen Abbremsung von Chrom-Atomen im Energiebereich 20–90 eV in einem Vanadiumeinkristall mit der Kernresonanzfluoreszenzmethode

F. JÄHNIG und J. KALUS

Laboratorium für Technische Physik der Technischen Hochschule München

(Z. Naturforschg. 20 a, 387–390 [1965]; eingegangen am 29. Dezember 1964)

Für kubisch-raumzentrierte Vanadiumeinkristalle wurde experimentell bestätigt, daß die Kernresonanzfluoreszenzausbeute von der Orientierung des Kristalls abhängt. Dies ist nur möglich, wenn die Abbremsung von Chrom-Rückstoßkernen mit Energien im Bereich von 20–90 eV im Einkristall anisotrop ist.

Es ergaben sich Ausbeuteunterschiede von 10%. Da die Messungen nur integrale Aussagen über alle Abbremsvorgänge innerhalb eines Kegels von  $122^\circ$  Öffnungswinkel gestatten, muß man annehmen, daß die Abbremsung sehr stark von der anfänglichen Flugrichtung der Kerne abhängt.

Es wird eine Formel abgeleitet für die Kernresonanzfluoreszenzausbeute in Einkristallen unter Berücksichtigung der anisotropen Abbremsung der Kerne.

## Theoretische Grundlagen

Das Grundproblem der Kernresonanzfluoreszenzmethode liegt darin, den Rückstoßenergieverlust  $\Delta E_R$  bei der Emission und Absorption von  $\gamma$ -Quanten zu kompensieren, so daß die von einem Kern emittierte  $\gamma$ -Strahlung von Kernen derselben Art absorbiert werden kann. Im Fall des Vanadiums sorgt der dem  $\gamma$ -Übergang vorangehende  $\beta$ -Zerfall für die Kompenstation (s. Abb. 1). Die Rückstoßenergie beträgt  $\Delta E_R = 21$  eV, so daß eine Überlappung von Emissions- und Absorptionslinie auf Grund ihrer natürlichen Linienbreite  $\Gamma$  und der DOPPLER-Verbreiterung  $\Delta$  durch Temperaturbewegung der Atome nicht möglich ist, da  $\sqrt{\Gamma^2 + \Delta^2} = 1,5$  eV<sup>1</sup>.

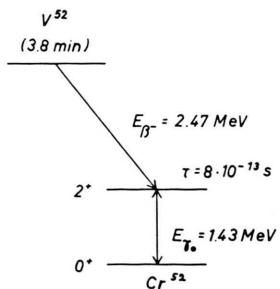


Abb. 1. Zerfallsschema von V<sup>52</sup>.

Bei dem  $\beta$ -Zerfall erhält der V<sup>52</sup>-Kern der Masse  $M$  einen Rückstoßimpuls  $\mathbf{p}_K = M \mathbf{v}_K$ . Wenn er sich mit der Geschwindigkeit  $v_0$  auf den Absorber zu be-

<sup>1</sup> F. R. METZGER, Progr. Nucl. Phys. 7, 53 [1959].

wegt, wird die emittierte  $\gamma$ -Strahlung wegen des DOPPLER-Effekts von der Energie  $E_\gamma$  zur Energie

$$E'_\gamma = E_\gamma (1 + v_0/c) \quad (1)$$

verschoben. Die emittierten Quanten können vom Cr<sup>52</sup> absorbiert werden, wenn folgende Resonanzbedingung erfüllt ist:

$$2 \Delta E_R = E'_\gamma - E_\gamma$$

$$\text{oder} \quad v_{\text{res}} = E_{\gamma_0}/M c = v_0, \quad (2)$$

wobei  $E_{\gamma_0}$  die Energie des angeregten Kernniveaus ist.

Die Ausbeute an resonant gestreuten Quanten ist für einen dünnen Streuer proportional zu

$$A_{\text{res}} = N(E_r)_{\text{res}} \int \sigma_{\text{sc}}(E) dE, \quad (3)$$

wenn  $N(E)$ , die spektrale Verteilung der anregenden  $\gamma$ -Quanten, eine gegenüber dem Wirkungsquerschnitt für Resonanzstreuung  $\sigma_{\text{sc}}(E)$  langsam veränderliche Funktion von  $E$  ist<sup>1</sup>. Der Integralausdruck hängt nur von Eigenschaften der Kerne des Streuers ab.  $N(E_r)_{\text{res}}$  wird im Anhang für einen Einkristall theoretisch berechnet und ergab sich als von der Kristallorientierung  $\langle \nu \rangle$  abhängig.

Um die Richtungsabhängigkeit näher zu untersuchen, kann man  $N(E_r)_{\text{res}}$  folgendermaßen schreiben:

$$N(E_r)_{\text{res}} = \text{const} \cdot \int W(\vartheta)_{\text{res}} d\vartheta, \quad (4)$$

wobei  $W(\vartheta)_{\text{res}} d\vartheta$  der Beitrag zur Resonanzausbeute von Kernen ist, deren Impulsrichtung in den Winkelbereich zwischen  $\vartheta$  und  $\vartheta + d\vartheta$  zeigt.  $\vartheta$  ist der



Winkel der Impulsrichtung bezüglich des Resonanzstreuers. Der Index  $\langle \nu \rangle$  soll besagen, daß die Kristallrichtung  $\langle \nu \rangle$  auf den Streuer zeigt.

Nimmt man nun an, daß die Abbremsung der Cr-Atome qualitativ ähnlich erfolgt, wie sie durch Berechnungen bei Kupfer von CUMMING und Mitarbeitern angegeben wird<sup>2</sup>, so ergibt sich im Fall des Vanadiums für  $W(\vartheta)_{\nu \nu}$  qualitativ ein Verlauf, wie er in Abb. 2 dargestellt ist. Folgende Annahmen wurden hierbei gemacht:

- a) Die Richtung der Geschwindigkeit  $v_K(t)$  ist konstant,
- b)  $|v_K(t)|$  fällt relativ abrupt ab in der Umgebung von  $t = t_a$  und
- c)  $t_a$  erfüllt die Bedingung  $t_a \ll \tau$ , wobei  $\tau$  die mittlere Lebensdauer des angeregten Zustands ist.

$W(\vartheta)_{\nu \nu}$  ist nun von  $\langle \nu \rangle$  abhängig und damit auch  $N(E_r)_{\nu \nu}$ .

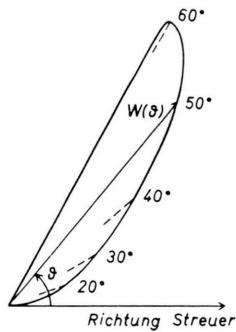


Abb. 2.  $W(\vartheta)d\vartheta$  ist die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten von Kernen, die resonanzfähige  $\gamma$ -Quanten emittieren bei Bewegung in Richtungen zwischen  $\vartheta$  und  $\vartheta+d\vartheta$ .

Im Fall des Vanadiums gibt die Resonanzausbeute  $A_{\nu \nu}$  eine Aussage über die Abbremsung aller Kerne, deren Impulsrichtungen innerhalb eines Kegels um die Achse  $\langle \nu \rangle$  mit dem Öffnungswinkel  $\vartheta_{\max} = 61^\circ$  liegen, und zwar vorwiegend in der Nähe des Kegelmantels.

### Experimentelle Durchführung

Die Kernresonanzfluoreszenzmethode wurde als Streuexperiment durchgeführt. Durch die Wahl eines großen Streuwinkels lassen sich die COMPTON-gestreuten Quanten im Detektor gut von den resonant gestreuten Quanten trennen. Es wurden die relativen Resonanzausbeuten für verschiedene Kristallrichtungen des kubisch-raumzentrierten Vanadiumgitters bestimmt. Zu dem Zweck

wurde die Einkristall-Quelle gedreht, während der Streuer in Ruhe blieb. Die Anordnung von Quelle, Streuer, Detektor und Monitor ist aus Abb. 3 zu erkennen.

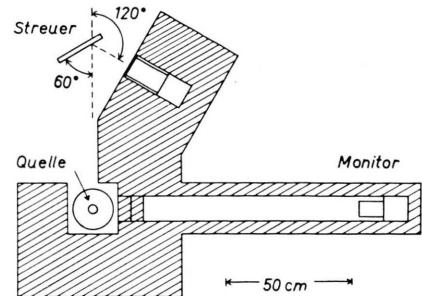


Abb. 3. Versuchsaufbau zur Messung der Kernresonanz-Fluoreszenzausbeute. Schnitt in Höhe der Quelle.

Das radioaktive  $V^{52}$  wurde durch Neutronenbestrahlung eines  $V^{51}$ -Einkristalls am Forschungsreaktor München erhalten. Wegen der kleinen Halbwertszeit von 3,8 min wurde die aktive Probe, in eine Polyäthylen-Halterung verpackt, über eine Rohrpostleitung vom Reaktorkern direkt in die Meßapparatur geschossen. Die Probenstärke betrug etwa 3 Curie. 14 gleichartige, pfennigförmige Vanadiumeinkristalle wurden abwechselnd als Quelle verwendet. Die Probenstärke wurde als  $Z_{\text{Monitor}}$  relativ mit dem Monitor bestimmt. Die Achse der V-Scheiben fiel mit der  $\langle 110 \rangle$ -Achse zusammen. Sie stand während aller Messungen vertikal. Durch Drehen der Proben um diese Achse lassen sich die drei Kristallachsen  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$  und  $\langle 111 \rangle$  in Richtung Streuer einstellen. Durch diese Anordnung wird zwar die Selbstabsorption der emittierten  $\gamma$ -Quanten in der Quelle groß, aber wegen der gleichbleibenden Geometrie ändert sie sich nicht für verschiedene Messungen. Voraussetzung dafür ist, daß die Scheiben während der Messung exakt horizontal liegen. Diese Lage ist von der Justierung der Polyäthylen-Probenhalter abhängig.

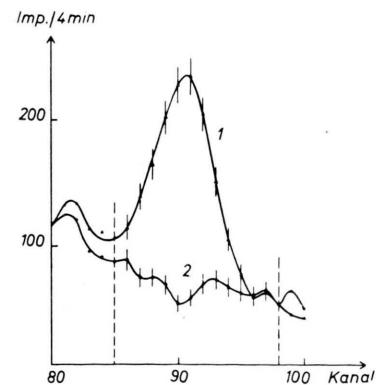


Abb. 4. Impulshöhenpektrum des Resonanzeffekts (Kurve 1) und des Nulleffekts (Kurve 2).

<sup>2</sup> J. B. CUMMING, A. SCHWARZSCHILD, A. W. SUNYAR u. N. T. PORILE, Phys. Rev. 120, 2128 [1960].

Der  $20\text{ cm} \times 20\text{ cm}$  große Streuer bestand aus Chrompulver. Ein Vergleichsstreuer wurde nicht verwendet, da a) nur relativ zwischen verschiedenen Kristallrichtungen gemessen wurde und der nichtresonante Anteil sich dabei nicht ändert und b) dieser Anteil nur unwesentlich über dem Nulleffekt lag, wie ein Vorversuch ergab. Der von äußeren Faktoren abhängige Anteil des Untergrunds wurde vor jeder Messung als Nulleffekt bestimmt.

Das Energiespektrum des  $3'' \times 3''$  NaJ(Tl)-Detektors wurde mit einem TMC-256-Vielkanal aufgenommen. Das Ergebnis einer Messung ist aus Abb. 4 zu ersehen.

In einer Meßreihe wurde, um systematische Fehler zu vermeiden, immer alternierend die relative Resonanzausbeute  $A_{\langle\nu\rangle}$  in zwei Richtungen  $\langle\nu_1\rangle$  und  $\langle\nu_2\rangle$  gemessen.

## Ergebnisse

Bei der Auswertung der Spektren wird die Summe der resonanten Impulse der  $i$ -ten Messung gebildet

$$Z^i = Z_{\text{ResE}}^i - Z_{\text{NE}}^i,$$

wobei  $Z_{\text{ResE}}^i$  die Gesamtzählrate an Impulsen unter dem peak ist und  $Z_{\text{NE}}^i$  die entsprechende Zählrate des Nulleffekts ist. Die Resonanzausbeute  $Z^i$  wird anschließend auf gleiche Probenstärke normiert:

$$A^i = Z^i / Z_{\text{Monitor}}^i.$$

Diese normierte Resonanzausbeute  $A^i$  wird über die  $n$  Messungen der Richtung  $\langle\nu\rangle$  einer Meßreihe gemittelt:

$$A_{\langle\nu\rangle} = \frac{1}{n} \sum_1^n A^i.$$

Aus beiden Mittelwerten für die zwei Richtungen  $\langle\nu_1\rangle$  und  $\langle\nu_2\rangle$  einer Meßreihe wird die relative Resonanzausbeute gebildet:

$$V = A_{\langle\nu_1\rangle} / A_{\langle\nu_2\rangle}.$$

Um den Einfluß der durch nicht exakt horizontale Lage der Kristallscheibchen möglicherweise veränderlichen Selbstabsorption auszuschalten, wurden in jeder Meßreihe die Probenhalter systematisch vertauscht. Das Ergebnis aus 66 Messungen ist

$$A_{\langle 111 \rangle} / A_{\langle 100 \rangle} = 1,026 \pm 0,010.$$

Die Ausbeute in Richtung der Raumdiagonalen ist also um 2,6% größer als die in Richtung Würfekante. Wesentlich kleiner als in diesen beiden Richtungen ist die Ausbeute in Richtung Flächendiagonale. Aus 63 Messungen ergab sich

$$A_{\langle 100 \rangle} / A_{\langle 110 \rangle} = 1,100 \pm 0,012.$$

Zur Probe wurden nach 12 Messungen zwischen den Richtungen  $\langle 111 \rangle$  und  $\langle 110 \rangle$  durchgeführt:

$$A_{\langle 111 \rangle} / A_{\langle 110 \rangle} = 1,119 \pm 0,033.$$

Auch hieraus folgt, daß  $A_{\langle 111 \rangle}$  größer als  $A_{\langle 100 \rangle}$  ist und daß diese beiden um etwa 10% größer sind als  $A_{\langle 110 \rangle}$ .

Dieses Ergebnis besagt aber nicht, daß die Abbremsung in Richtung  $\langle 110 \rangle$  größer wäre als in den beiden anderen Richtungen. Denn die Wahrscheinlichkeit  $W(\vartheta)$  für das Auftreten von Kernen, die resonanzfähige  $\gamma$ -Quanten emittieren bei Bewegung in Richtung  $\vartheta$ , zeigte einen keulenförmigen Verlauf (s. Abb. 2). Den Hauptbeitrag zur Resonanzausbeute liefern Kerne, deren Geschwindigkeitsvektoren jeweils in der Nähe des Mantels eines Kegels vom Öffnungswinkel  $\vartheta_{\max} = 61^\circ$  um die betreffende Kristallachse liegen. Die relativen Resonanzausbeuten zeigen also nur, daß die Abbremsung von Rückstoßkernen, die sich unter Winkeln bis zu  $61^\circ$  zur Achse  $\langle 100 \rangle$  bewegen, insgesamt etwas stärker ist als die der Kerne, die sich unter denselben Winkeln zur Achse  $\langle 111 \rangle$  bewegen. Am größten ist die Abbremsung, wenn Kerne in Richtungen bis zu  $61^\circ$  zur Achse  $\langle 110 \rangle$  fliegen.

## Anhang

### 1. Einleitung

Für einen dünnen Streuer ist die Ausbeute an resonant gestreuten Quanten proportional zu

$$A = \int N(E) \sigma_{\text{sc}}(E) dE, \quad (1)$$

wenn  $N(E) dE$  die Zahl der  $\gamma$ -Quanten im Energiebereich  $E \dots E + dE$  im anregenden Strahl und  $\sigma_{\text{sc}}(E)$  der Wirkungsquerschnitt für Resonanzstreuung sind<sup>1</sup>.

Ist  $N(E)$  eine langsam veränderliche Funktion von  $E$  verglichen mit  $\sigma_{\text{sc}}(E)$ , so kann man schreiben:

$$A = N(E_r) \int \sigma_{\text{sc}}(E) dE. \quad (2)$$

Da  $\sigma_{\text{sc}}$  im Prinzip bekannt ist<sup>1</sup>, läßt sich  $A$  bestimmen, wenn  $N(E_r)$  bekannt ist. Für den Fall eines Kaskadenüberganges, z. B. für eine  $\beta$ - $\gamma$ -Kaskade, ist  $N(E_r)$  von CUMMING und Mitarbeitern berechnet worden<sup>2</sup>. Ihr Ergebnis ist der Ableitung nach für einen Polykristall bzw. eine Flüssigkeit gültig.

## 2. Kernresonanzfluoreszenzausbeute in einen Einkristall

Die Geschwindigkeit eines angeregten Kernes, der über einen  $\gamma$ -Zerfall in den Grundzustand zerfällt, sei

$$\mathbf{v}(t) = v_x(t) \mathbf{i} + v_y(t) \mathbf{j} + v_z(t) \mathbf{k}, \quad (3)$$

wobei als Zeitnullpunkt, z. B. bei einer  $\beta$ - $\gamma$ -Kaskade, der Zeitpunkt des  $\beta$ -Zerfalls gewählt ist und  $|\mathbf{v}(t)|$  bei gleichem  $|\mathbf{v}(0)|$  von der Anfangsrichtung abhängig sein kann. In der  $i$ -Richtung soll nun der Resonanzstreuer liegen. Resonanzstreuung kann dann erfolgen, wenn die Resonanzbedingung

$$v_x(T) = v_{\text{res}} = E_\gamma/M c \quad (4)$$

erfüllt ist. Hierbei sind  $E_\gamma$  die Energie des  $\gamma$ -Quants,  $M$  die Masse des Kerns und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit. In Abb. 5 und 6 ist dieser Sachverhalt verdeutlicht.

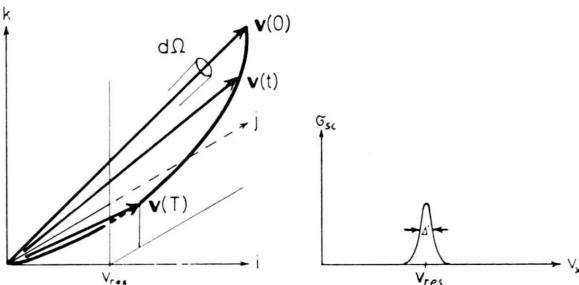


Abb. 5. Zeitlicher Verlauf des Geschwindigkeitsvektors. Der Resonanzstreuer liegt in der  $i$ -Richtung.

Abb. 6. Wirkungsquerschnitt für Resonanzstreuung als Funktion der Geschwindigkeitskomponente des Kernes  $v_x$ .

Die Resonanzausbeute für Kerne, deren Geschwindigkeitsrichtungen für  $t = 0$  in das Raumwinkellement  $d\Omega$  zeigen und deren Anfangsimpulse  $|\mathbf{v}(0)|$  gleich und isotrop verteilt sind, ist

$$dW = \text{prop} \cdot d\Omega e^{-t/\tau} \sigma_{\text{sc}}(v_x) dt, \quad (5)$$

wobei  $\tau$  die mittlere Lebensdauer des angeregten Kernniveaus und  $t = t(v_x)$  ist.

Kann man  $\sigma_{\text{sc}}(v_x)$  durch eine  $\delta$ -Funktion ersetzen, so gilt

$$dW = \text{prop.} \frac{e^{-T/\tau} d\Omega}{|dv_x/dt|_T} \quad (6)$$

mit  $(dv_x/dt)_T \neq 0$ ; (7)

$T$  ergibt sich dabei aus der Resonanzbedingung (4).

Für ein Geschwindigkeitsspektrum  $H(v) dv$  mit  $v = |\mathbf{v}(0)|$  erhält man dann, wenn man die Proportionalitätskonstante noch bestimmt:

$$N(E_r) = \frac{c}{\tau} \int_{v_{\text{res}}}^{v_{\text{max}}} H(v) \left[ \int_{\Omega} \frac{e^{-T/\tau} d\Omega}{|dv_x/dt|_T} \right] dv / \left[ 4 \pi E_\gamma \int_0^{v_{\text{max}}} H(v) dv \right] \quad (8)$$

$N(E_\gamma)$  ist von der Kristallorientierung abhängig.

## 3. Vereinfachung

Ändert sich zwar der Betrag von  $\mathbf{v}(t)$  in Abhängigkeit von  $t$ , nicht aber die Richtung, so gilt Gl. (8), worin jedoch  $v_x$  zu ersetzen ist durch

$$v_0 = |\mathbf{v}(t)| \cos \alpha,$$

wobei  $\alpha$  der Winkel zwischen  $i$ -Achse und der Richtung von  $v(t)$  ist.

## 4. Einschränkungen

Die Beziehung (8) ist nur gültig, solange  $(dv_x/dt)_T \neq 0$  ist und der Wirkungsquerschnitt für Resonanzstreuung als  $\delta$ -Funktion ansetzbar ist. Läßt man letztere Forderung fallen, berücksichtigt man also die berechenbare Breite  $\Delta'$  des Resonanzwirkungsquerschnitts (s. Abb. 6), so ist die Beziehung (8) nur gültig, solange

$$\left( \frac{dv_x}{dt} \right)_T \gg \frac{1}{\tau} \sqrt{\frac{2 k \Theta}{M}}$$

ist, wobei  $k$  die BOLTZMANN-Konstante und  $\Theta$  die absolute Temperatur des Streuers ist.

Herrn Prof. MAIER-LEIBNITZ danken wir für die Förderung der Experimente. Unser Dank gilt auch der entgegenkommenden Hilfe der Bestrahlungsgruppe am FRM.