

Abbremsung von Chrom-Atomen mit einer Energie von 20-90 eV in verschiedenen Substanzen

JÜRGEN KALUS

Laboratorium für Technische Physik der Technischen Hochschule München

(Z. Naturforsch. 20 a, 391—394 [1965]; eingegangen am 29. Dezember 1964)

Mit Hilfe der Kernresonanzfluoreszenz wurden Abbremswege von Cr-Atomen in verschiedenen Verbindungen im Energiebereich von 20—90 eV bestimmt. Die Abbremswege betragen in Vanadiummetall ca. 2 Å und steigen bei Verbindungen und Lösungen bis auf 6 Å an.

Mit Hilfe der Kernresonanzfluoreszenz lassen sich bei einigen Atomen Aussagen über deren Abbremsung in verschiedenen Medien machen¹⁻³. Beim Zerfall eines angeregten Kernzustandes zum Grundzustand durch Emission eines energiereichen γ -Quants mit einer Energie E_γ im Bereich von 1 MeV erhält man normalerweise keine Kernresonanzfluoreszenz, da

1. die Emissions- und Absorptionslinien wegen der beim Zerfall und der Wiederabsorption auf das Atom übertragenden Impulse um den Energiebetrag $\Delta E = E_\gamma^2/Mc^2$ (M = Masse des Atoms) auseinander liegen,
2. die effektive Breite der Emissionslinie und Absorptionslinie, auch bei Berücksichtigung der Temperaturbewegung der Atome, sehr viel kleiner als ΔE ist, so daß keine Überlappung eintritt³.

Erfolgt der γ -Zerfall bei einem bewegten Kern, so wird die Emissionslinie durch den DOPPLER-Effekt verbreitert. Es kann dann Kernresonanzfluoreszenz beobachtet werden, wenn der Impuls p des Kerns im Moment des γ -Zerfalls größer, bzw. die Impulskomponente in Richtung des Resonanzstreuers gleich E_γ/c ist³. Im Fall von angeregtem ^{52}Cr erhält der Kern durch einen vorangehenden β -Zerfall einen Impuls p , der größer als E_γ/c sein kann (s. Abb. 1).

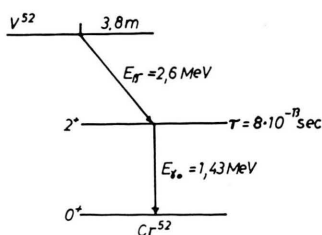


Abb. 1. Zerfallsschema von V^{52} .

¹ I. B. CUMMING, Phys. Rev. 120, 2128 [1960].

² M. GIANNINI, Nuovo Cim. 22, 1197 [1961].

³ F. R. METZGER, Progr. Nucl. Phys. 7, 53 [1959].

Versuchsaufbau

Das radioaktive V^{52} (Quellstärke ca. 4 Curie) wurde im Forschungsreaktor München in der Rohrpostanlage hergestellt und direkt in die Meßapparatur geschossen. Die Anordnung von Quelle, Streuer und Strahlendetektor ($3'' \times 3''$ NaJ) geht aus Abb. 2 hervor. Vor dem NaJ-Kristall war noch ein Absorber von 14 mm Blei angebracht, um die COMPTON-gestreuten γ -Quanten zu schwächen. Gemessen wurde je 4 Minuten lang, und zwar a) der Nulleffekt, b) mit resonantem Cr-Streuer und c) mit nichtresonantem Eisenvergleichsstreuer, der rechnerisch so dimensioniert wurde, daß die nichtresonante elastische Streustrahlung von Cr- und Fe-Streuer praktisch gleich war.

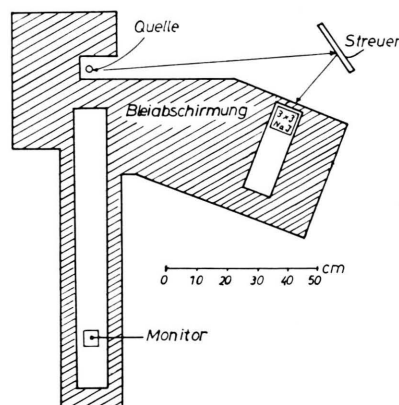


Abb. 2. Schnitt durch den Versuchsaufbau.

Die Impulse des NaJ-Kristalls wurden in einem 256-Vielkanalanalysator gespeichert. Abb. 3 zeigt das Ergebnis je einer 4-minütigen Messung für die Verbindung V_2O_5 .

Die Stärke der Vanadiumpräparate wurde relativ mit einem Monitor gemessen. Durch Blindversuche wurde festgestellt, daß die Aktivitäten von Verunreinigungen stets kleiner als 1% der Aktivität des Vanadiums waren.

⁴ LANDOLT-BÖRNSTEIN, Zahlenwerte und Funktionen, Neue Serie I/1, S. 2—106.



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.

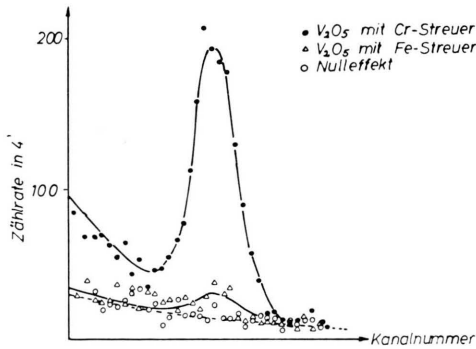


Abb. 3. Impulshöhenspektrum des Resonanzeffektes (●), des Nulleffektes (○) und des Beitrags durch die elastische Streuung (△).

Es wurden die relativen Resonanzausbeuten von Vanadiummetall, vier Vanadiumverbindungen und von gelösten Vanadiumsalzen untersucht (s. Tab. 1). Weiterhin wurde die absolute Resonanzausbeute von V_2O_5 gemessen. Hierbei wurde der direkte Strahl der Quelle mit dem gleichen Strahlendetektor ($3' \times 3'$ NaJ) in einem Abstand von 415 cm beobachtet. Dadurch läßt sich bei der Absolutbestimmung die Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors eliminieren, so daß nur noch eine Korrektur bezüglich der verschiedenen Peaknachweiswahrscheinlichkeiten bei den verschiedenen Abständen Quelle—NaJ bzw. Streuer—NaJ nötig war. Die Raumwinkel Quelle—Streuer wurden berechnet, wobei zur Erhöhung der Genauigkeit der Streuer in 342 Flächenelemente unterteilt wurde. Der Faktor (Raumwinkel Streuer—NaJ) \times (Nachweiswahrscheinlichkeit des NaJ) wurde relativ mit einem Co^{60} -Präparat (1,33 MeV gegenüber 1,434 MeV der γ -Linie des Cr^{52}) näherungsweise bestimmt, wobei der Streuer wieder in 342 Teile unterteilt wurde. Bei der Berechnung der absoluten Ausbeute wurde die Tatsache, daß der Streuer endlich dick ist, berücksichtigt, ebenso die Winkelkorrelation zwischen dem auf den Streuer einfallenden γ -Quant und dem wieder emittierten Quant. (Dicke des Streuers: 3,466 g/cm², Fläche des Streuers: 342 cm².)

Theorie

Die Anzahl Z der resonant gestreuten Quanten ist für dünne Streuer

$$Z = \text{prop.} \int_0^\infty N(E) \sigma_s(E) dE, \quad (1)$$

wobei $N(E)$ die Anzahl der auf den Streuer einfallenden Quanten der Energie E pro Energieintervall und $\sigma_s(E)$ der effektive Wirkungsquerschnitt für resonante Streuung sind³. Da $N(E)$ eine langsam variierende Funktion von E , verglichen mit dem Verlauf von $\sigma_s(E)$ ist, kann man schreiben:

$$C = \text{prop.} N(E_r) \cdot \int_0^\infty \sigma_s(E) dE = \text{prop.} N(E_r) F. \quad (2)$$

Im Faktor F stehen nur Kerneigenschaften, wie die Energie E_γ des emittierten γ -Quants, die Lebensdauer τ des angeregten Zustandes und die Spins des Anfangs- und Endzustandes des Übergangs.

Der Faktor $N(E_r)$ ist in unserem Fall, d. h. bei vorausgehendem β -Zerfall, von der Abbremsung des Atoms in dessen Umgebung abhängig. $N(E_r)$ läßt sich berechnen, wenn 1. der zerfallende Kern nicht abgebremst wird, d. h. wenn das radioaktive Vanadium im monoatomaren gasförmigen Zustand mit einer mittleren freien Weglänge $d \gg p\tau/M$ vorliegt und wenn 2. die β -Neutrino-Winkelkorrelationskonstante λ bekannt ist⁵.

Die Berechnung ergab mit einer β -Maximalenergie E_β von $6,47 \pm 0,04$ MeV, bezogen auf einen β -Zerfall:

$$\begin{aligned} N_{+1}(E_r)_{\text{Gas}} &= (6,84 \pm 0,06) \cdot 10^{-3}/\text{eV} \quad \text{für } \lambda = +1, \\ N_0(E_r)_{\text{Gas}} &= (6,62 \pm 0,06) \cdot 10^{-3}/\text{eV} \quad \text{für } \lambda = 0, \\ N_{-1}(E_r)_{\text{Gas}} &= (6,40 \pm 0,06) \cdot 10^{-3}/\text{eV} \quad \text{für } \lambda = -1. \end{aligned} \quad (3)$$

Daß $N(E_r)_{\text{Gas}}$ hier nur wenig von λ abhängt, ist ein Zufall. Gilt z. B. $E_\beta < E_\gamma < \sqrt{E_\beta(E_\beta + 2mc^2)}$, so sind wesentlich größere Unterschiede zu erwarten. Im Grenzfall $E_\gamma \approx \sqrt{E_\beta(E_\beta + 2mc^2)}$ erhält man:

$$\frac{N_{+1}(E_r)_{\text{Gas}}}{N_0(E_r)_{\text{Gas}}} \approx 2, \quad \frac{N_{-1}(E_r)_{\text{Gas}}}{N_0(E_r)_{\text{Gas}}} \approx \frac{m^2 c^4}{E_\beta^2},$$

falls die β -Maximalenergie sehr viel größer als die Ruheenergie mc^2 des Elektrons ist.

Für den allgemeinen Fall des nicht freien Atoms ergibt sich¹, falls man auf $N(E_r)_{\text{Gas}}$ bezieht:

$$A_x = \frac{N(E_r)_x}{N(E_r)_{\text{Gas}}} = \int_{V_{\min}}^{V_{\max}} H(V_0) \cdot \left[\int_0^T \frac{\exp(-t/\tau)}{V(t, V_0)} dt \right] dV_0 \int_{V_{\min}}^{V_{\max}} \frac{H(V_0)}{V_0} dV_0, \quad (4)$$

⁵ I. M. BLATT u. V. F. WEISSKOPF, Theoretische Kernphysik, B. G. Teubner Verlagsgesellschaft, Leipzig 1959, S. 614 f.

⁶ D. G. MEGLI, Nucl. Phys. 46, 233 [1963].

wobei V_{\min} die Geschwindigkeit des Kerns, bei der gerade noch Kernresonanzfluoreszenz auftreten kann ($V_{\min} = 0,833 \cdot 10^6$ cm/sec), V_{\max} die maximal auftretende Geschwindigkeit des Kerns

$$(V_{\max} = 1,812 \cdot 10^6 \text{ cm/sec}),$$

t die Zeit, V_0 die Anfangsgeschwindigkeit des Kerns zur Zeit $t=0$, d. h. zur Zeit des β -Zerfalls, $H(V_0)$ das Geschwindigkeitsspektrum zur Zeit $t=0$, $V(t, V_0)$ die Momentangeschwindigkeit des Atoms zur Zeit t und T die Zeit, nach der das Atom eine Geschwindigkeit von V_{\min} erreicht hat, sind.

$V(t, V_0)$ kann von der Orientierung von V_0 bezüglich der Umgebung abhängen. Ist dies der Fall, so muß hierüber gemittelt werden. Die Formel ist gültig für einen Polykristall und eine Flüssigkeit, nicht aber für einen Einkristall.

Meßergebnisse

In Tab. 1 sind die gemessenen Werte von A_X sowie die auf $A_{V_{2O_5}}$ bezogenen Werte von $A_X/A_{V_{2O_5}}$ eingetragen. Die Fehler von $A_X/A_{V_{2O_5}}$ (Relativmessung) sind im wesentlichen die statistischen Fehler, während der Hauptbeitrag beim Fehler von A_X (Absolutmessung) auf die Meßungenauigkeit der Lebensdauer $\tau = (8 \pm 2) \cdot 10^{-13}$ sec des 1,434 MeV-Niveaus zurückzuführen ist⁷. Für $N(E_r)_{V_{2O_5}}$ ergab sich (für $\tau \approx 8 \cdot 10^{-13}$ sec):

$$N(E_r)_{V_{2O_5}} = \frac{(1,760 \pm 0,132) \cdot 10^8 \tau}{0,8357 - 2,462 \cdot 10^{-14} \tau + 5 \cdot 10^{-28} / \tau^2} \quad (5)$$

Diskussion der Meßergebnisse

Die Messungen gestatten es nicht, ohne Theorie Aussagen über die eigentlich interessierende Größe $V(t, V_0)$ in Gl. (4) zu machen. Für den Fall des Kupfergitters liegen Rechnungen von GIBSON⁸ vor, nicht aber für das Vanadium oder für Vanadiumverbindungen. Um eine Übersicht über die Größenordnung des Abbremsweges s , d. h. des Weges, den das Teilchen während seiner Abbremsung von V_{\max} auf V_{\min} zurücklegt, zu bekommen, kann man in Gl. (4) z. B. einfache analytische Funktionen einsetzen. Nach den Rechnungen von GIBSON kann man im Kupfergitter die Geschwindigkeitsfunktion $V(t, V_0)$ mit einiger Näherung durch eine Funktion der Art

$$V(t, V_0) = \begin{cases} V_0 & \text{von } t=0 \text{ bis } t=T, \\ 0 & \text{von } t=T \text{ bis } t=\infty \end{cases} \quad (6)$$

mit der Nebenbedingung $s = V_0 T = \text{const}$ ersetzen.

Dies ergibt dann für Vanadium:

$$\begin{aligned} s &= 1,2 \cdot 10^6 \cdot A_X \cdot \tau & \text{für } \lambda = -1, \\ s &= 1,3 \cdot 10^6 \cdot A_X \cdot \tau & \text{für } \lambda = 0, \\ s &= 1,4 \cdot 10^6 \cdot A_X \cdot \tau & \text{für } \lambda = +1. \end{aligned} \quad (7)$$

Bei wässrigen Lösungen wurde von CUMMING¹ für $V(t, V_0)$ ein Modell vorgeschlagen, bei dem als erste Näherung elastische Stöße die Abbremsung verursachen. Für $V(t, V_0)$ und s ergibt sich dann

$$V(t, V_0) = V_0 / (1 + B V_0 t); \quad B = \text{const}, \quad (8)$$

$$s = 2,1 \cdot A_X \cdot \tau \quad \text{für } \lambda = 0. \quad (9)$$

Den Weg s kann man nun mit den Abständen des Vanadiumatoms zu seinen nächsten Gitteratomen ver-

Substanz X	Relative Ausbeute $A_X/A_{V_{2O_5}}$	Absolute Ausbeute A_X	Andere Messungen A_X
V_2O_5	1	$2,60 \pm 0,67 \cdot 10^{-2}$	
V-Metall	$0,729 \pm 0,016$	$1,87 \pm 0,48 \cdot 10^{-2}$	$0,015 \pm 0,0075$ s. Anm. ⁷
VOC_2O_4	$1,088 \pm 0,020$	$2,825 \pm 0,73 \cdot 10^{-2}$	
$V(CH-(COCH_3)_2)_3$	$1,510 \pm 0,030$	$3,93 \pm 1,03 \cdot 10^{-2}$	
$VO(CH-(COCH_3)_2)_2$	$1,432 \pm 0,030$	$3,74 \pm 0,99 \cdot 10^{-2}$	
V gelöst in verdünnter HNO_3	$1,398 \pm 0,065$	$3,63 \pm 0,95 \cdot 10^{-2}$	
$VOSO_4$ gelöst in H_2O	$1,430 \pm 0,043$	$3,72 \pm 0,96 \cdot 10^{-2}$	$0,03 \pm 0,015$ s. Anm. ⁷
$VH(SO_4)_2$ gelöst in verdünnter HNO_3	$1,366 \pm 0,065$	$3,39 \pm 0,89 \cdot 10^{-2}$	

Tab. 1. Ergebnisse der Ausbeutemessungen.

⁷ S. OFER, Phys. Rev. Letters **3**, 384 [1959].

⁸ J. B. GIBSON, Phys. Rev. **120**, 1229 [1960].

gleichen. Charakteristisch ist, daß bei Vanadiummetall s mit dem Geschwindigkeitsansatz (6) kleiner als der mittlere Abstand D zu den nächsten Gitteratomen ist. Dieses Ergebnis ist in Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Rechnungen von GIBSON an Kupfer. Bei den Vanadiumverbindungen und bei den Lösungen von Vanadium(-salzen) in Wasser und wässriger Salpetersäure wird das vorher berechnete s systematisch größer als D .

Es ist zu beachten, daß der Ansatz (6) für $V(t, V_0)$, der für Vanadiummetall noch einige Berechtigung hatte, bei den Verbindungen sicher schlechter mit der Wirklichkeit übereinstimmt als der Ansatz (8). Durch eine Analyse der Gitterstruktur der nächsten Umgebung der V -Atome in den verschiedenen Verbindungen⁹⁻¹¹ kann man aus den Ausbeutemessungen

entnehmen, daß hier nicht nur die nächsten Gitteratome für die Abbremsung verantwortlich sind, wie beim Vanadiummetall. Andererseits ist zu beachten, daß bei den Verbindungen das Vanadiumatom zu einem nicht näher bekannten Prozentsatz gar nicht mehr auf einem regulären Gitterplatz sitzt, da es bei der Reaktorbestrahlung durch den $(n-\gamma)$ -Prozeß schon einen Rückstoß von größenordnungsmäßig 200 eV erhalten hat und deshalb auf einem Zwischengitterplatz sitzen kann, dessen nächste Umgebung wesentlich anders aussehen kann wie bei einem regulären Gitterplatz.

Herrn Prof. MAIER-LEIBNITZ danke ich für sein stetiges Interesse am Fortgang der Experimente. Mein Dank gilt auch der entgegenkommenden Hilfe der Bestrahlungsgruppe am FRM.

⁹ R. P. DOGGE, J. Chem. Phys. **35**, 64 [1961].

¹⁰ A. BYSTRÖM, Acta Chem. Scand. **4**, 1119 [1950].

¹¹ R. B. ROOF, Acta Cryst. **9**, 781 [1956].

Nachweis der Volumen-Ionisation in organischen Flüssigkeiten

H. BÄSSLER, P. MAYER und N. RIEHL

Physik-Department der Technischen Hochschule München

(Z. Naturforschg. **20 a**, 394—400 [1965]; eingegangen am 10. Dezember 1964)

In order to study the bulk-conductivity in organic liquids measurements with blocking quartz-electrodes were made. When applying a constant field, a bulk-current through the dielectric liquid can be observed, which is decreasing exponentially

$$j_d(t) = j_0 - \exp\{-t/R-C\} + j_0 + \exp\{-t/R+C\}.$$

R_- and R_+ are the bulk-resistivities for negative and positive charge-carriers, from which the bulk-conductivity of the liquid can be calculated. It is identical with the dc-conductivity measured with conducting electrodes, that is it obeys the law:

$$\sigma = \sigma_{01} \exp\{-E_1/kT\} + \sigma_{02} \exp\{-E_2/kT\}.$$

Therefore the generation of charge-carriers must be independent of the electrodes and the activation-energies E_1 and E_2 must correlate with ionisation within the liquid. The mobility of negative carriers is about two or three times that of positive ones. This fact leads to conclusions concerning the nature of the carriers. A tunnel-process is proposed to explain the discharging of positive ions at a metallic cathode.

Bei der Untersuchung von Stromleitungsphänomenen in organischen Kristallen spielt die Kontaktierung eine entscheidende Rolle. Verwendet man beispielsweise bei dünnen Anthracen-Einkristallen eine KJ/J_2 -Lösung mit überschüssigem Jod als Anode, so kann man raumladungsbeschränkte Ströme beobachten¹. Diese Flüssigkeitselektrode injiziert nämlich Löcher und bildet einen ohmschen Kontakt² zum Kristall. Der Vorgang in der Grenzschicht ist noch

weitgehend ungeklärt, doch spielen mit Sicherheit *charge-transfer*-Komplexe eine wesentliche Rolle bei der Ladungsträgerinjektion. Schwächer injizierende Elektroden wie Leitsilber oder Wasser liefern keinen raumladungsbeschränkten Strom. Es besteht allerdings die Möglichkeit, daß auch in diesem Fall die Dunkelleitfähigkeit des Kristalls wesentlich durch die Injektion und nicht durch Ladungsträgererzeugung im Volumen bestimmt wird.

¹ P. MARK u. W. HELFRICH, J. Appl. Phys. **33**, 205 [1962].

² H. KALLMANN u. M. POPE, J. Chem. Phys. **32**, 300 [1960].