

Mössbauer-Untersuchungen an den 2<sup>+</sup>-Rotationsniveaus von Hf<sup>176</sup> und Hf<sup>180</sup>

E. GERDAU, H. J. KÖRNER, J. LERCH und P. STEINER

II. Institut für Experimentalphysik, Universität Hamburg

(Z. Naturforsch. 21 a, 941–945 [1966]; eingegangen am 4. April 1966)

Herrn Professor Dr. W. GENTNER zum 60. Geburtstag gewidmet

MÖSSBAUER experiments have been performed on the 88.3 keV level in Hf<sup>176</sup> and the 93.3 keV level in Hf<sup>180</sup>. A model-independent ratio for the quadrupole moments of the 2<sup>+</sup> rotational states could be derived from the measured hyperfine splittings. The result is

$$Q(\text{Hf}^{176})/Q(\text{Hf}^{180}) = 1.10 \pm 0.02$$

in agreement with the model-dependent value calculated from the transition probabilities.

Die Kerneigenschaften der stark deformierten Hafnium-Isotope sind mit den Methoden der  $\gamma$ -Spektroskopie intensiv untersucht worden<sup>1</sup>. Die niedrigsten Anregungsniveaus der gg-Kerne Hf<sup>174</sup> bis Hf<sup>180</sup> lassen sich gut durch das kollektive Modell beschreiben. Die 2<sup>+</sup>-Rotationszustände haben Energien zwischen 80 keV und 100 keV und mittlere Lebensdauern von  $\sim 2$  nsec. Sie sind daher für MÖSSBAUER-Untersuchungen gut geeignet.

In der vorliegenden Arbeit wird über Experimente am Hf<sup>176</sup> und Hf<sup>180</sup> berichtet. Aus den beobachteten Hyperfeinaufspaltungen lassen sich Aussagen über die elektrische Wechselwirkung in den 2<sup>+</sup>-Rotationszuständen dieser Kerne gewinnen. Dadurch wird es möglich, eine modellunabhängige Information über das Verhältnis der Quadrupolmomente dieser Niveaus zu erhalten. Dieser Wert kann mit dem modellabhängigen Ergebnis verglichen werden, das sich aus den gemessenen reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten ableiten läßt.

## Experimentelle Methode

Bei allen Experimenten wurden Quelle und Absorber auf 4,2 °K gekühlt. Die Messungen wurden nach der Absorptionmethode in konventioneller Anordnung durchgeführt. Als Antrieb diente ein rückgekoppeltes Doppellautsprechersystem, das durch einen Sinusgenerator erregt wurde. Die Registrierung der Impulse erfolgte mit Hilfe eines 400 Kanal-Analysators, dessen Adressen synchron mit dem Bewegungsablauf weitergeschaltet wurden. Die Geschwindigkeitseichung konnte in allen Fällen ohne Veränderung der Einstellung durch Ausmessung eines Fe<sup>57</sup>-Hyperfeinspektrums ermittelt werden.

Als Quellen wurden Lu<sup>176</sup> (3,7 h) und Hf<sup>180m</sup> (5,5 h) verwendet. Für die Experimente am Hf<sup>176</sup> wurde angereichertes (99,8%) Lu<sub>2</sub><sup>176</sup>O<sub>3</sub> im Geesthachter Reaktor

<sup>1</sup> Nuclear Data Sheets, National Academy of Sciences, Washington, D.C.

bestrahlt. Die Messungen konnten über vier Halbwertszeiten des Mutterisotops ausgedehnt werden, ohne daß sich ein Untergrund durch das gleichzeitig aktivierte Lu<sup>177</sup> bemerkbar machte. Für die Experimente am Hf<sup>180</sup> wurde angereichertes (85%) Hf<sup>179</sup>O<sub>2</sub> bestrahlt, um den Untergrund des Hf<sup>181</sup> klein zu halten und Selbstabsorption in der Quelle zu vermeiden. Die Quellen wurden jeweils 30 min lang bei 1000 °C getempert. Als Absorber wurden Verbindungen aus natürlichem Hafnium verwendet.

## Auswerteverfahren

Da bei den vorliegenden Messungen keine Einlinienquellen zur Verfügung standen, mußte bei der Auswertung der allgemeine Fall überlagerter aufgespaltener Spektren in Quelle und Absorber diskutiert werden. Das Transmissionsspektrum ist bei Verwendung selbstabsorptionsfreier Quellen gegeben durch:

$$P(v) = N \left[ 1 - f + f \int_{-\infty}^{+\infty} dE \sum_{I=1}^{N_Q} W_Q(I) \frac{1}{2} \frac{\Gamma_Q}{[E - E_Q(I) + (v/c) E_0]^2 + [\frac{1}{2} \Gamma_Q]^2} \right] \quad (1)$$

$$\exp \left\{ - \sum_{k=1}^{N_A} W_A(k) T_A \frac{\Gamma_A}{T_A} \frac{1}{4} \frac{\Gamma_A^2}{[E - E_A(k)]^2 + [\frac{1}{2} \Gamma_A]^2} \right\}$$

mit  $v$  = Relativgeschwindigkeit zwischen Quelle und Absorber,

$N$  = Normierungsfaktor,

$f$  = rückstoßfreier Anteil in der Quelle,

$N_Q, N_A$  = Zahl der auftretenden Linien in Quelle und Absorber,

$W(I)$  = relative Intensität des betrachteten Übergangs  $I$ ,

$\Gamma_Q, \Gamma_A$  = Linienbreiten in Quelle und Absorber,

$E(I)$  = Übergangsenergie für eine ZEEMAN-Komponente,

$E_0$  = Energie des untersuchten Kernniveaus,

$T_A$  = effektive Dicke des Absorbers.



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.

Geschlossene Lösungen des in Gl. (1) auftretenden Integrals sind nicht bekannt. Für einzelne Linien und weit aufgespaltene Spektren existieren gute Näherungsformeln<sup>2,3</sup>. Im vorliegenden Fall bestehen die gemessenen Spektren ausnahmslos aus dicht beieinanderliegenden Resonanzen, wobei die Linien sich stark überlappen. Daher mußte der oben angegebene Ausdruck (1) direkt zur Auswertung benutzt werden. Dazu wurde ein Rechenprogramm für die IBM-7044 geschrieben, in dem die Integrationen numerisch mit Hilfe des Gauss'schen Verfahrens durchgeführt werden.

### Experimente am 88,4 keV-Niveau des Hf<sup>176</sup>

#### a) Messungen am System Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> – HfN

Das als Quelle benutzte Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kristallisiert in der C-Form der Seltenen Erdoxyde<sup>4</sup>. Daher war zu erwarten, daß das beim Zerfall gebildete Hf<sup>176</sup> als Fremdatom an zwei nicht äquivalenten Gitterplätzen elektrischen Feldgradienten ausgesetzt ist. Als Einlinienabsorber wurde HfN verwendet. Es kristallisiert im NaCl-Typ.

Abb. 1 zeigt das Ergebnis der Messung. Die ausgezogene Kurve ist das Resultat eines Angleichs, bei dem zwei Feldgradienten und axiale Asymmetrie der Wechselwirkung berücksichtigt wurden. Rechnungen mit nur einem axialasymmetrischen Feldgradienten ergaben keine befriedigende Beschreibung der Meßdaten. Die Wechselwirkungsparameter sind in Tab. 1 gegeben.

	$\hbar \omega_E [10^{-6} \text{ eV}]$	$\eta$	rel. Intensität [%]
Gitterplatz I	$+(0,163 \pm 0,004)$	$0,313 \pm 0,007$	$(80 \pm 2)$
Gitterplatz II	$-(0,362 \pm 0,008)$	$\approx 0$	$(20 \pm 2)$

Tab. 1. Wechselwirkungsparameter für Hf<sup>176</sup> in Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Dabei ist

$$\hbar \omega_E = \frac{e Q \cdot V_{zz}}{4 I (2 I - 1)}$$

und

$$\eta = \frac{V_{xx} - V_{yy}}{V_{zz}}.$$

Das Ergebnis für die relativen Anteile der beiden Gitterplätze (4 : 1) liegt außerhalb der Fehler über

dem aus der Kristallstruktur erwarteten Verhältnis (3 : 1). Daraus kann man schließen, daß die DEBYE-Temperaturen für die beiden Gitterplätze unterschiedlich sind.

Bei allen weiteren Rechnungen wurden die aus diesem Angleich gewonnenen Werte als feste Parameter für die Quelle eingegeben.

#### b) Messungen am System Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> – HfO<sub>2</sub>

HfO<sub>2</sub> kristallisiert im Gittertyp des CaF<sub>2</sub> (s. Anm. ref. <sup>4</sup>). Dabei besetzen alle Hafniumionen äquivalente Gitterplätze. Abb. 2 zeigt das gemessene MÖSSBAUER-Spektrum. Der Angleich liefert einen axialsymmetrischen Feldgradienten am Kernort. Für die elektrische Wechselwirkung ergibt sich

$$\hbar \omega_E = -(0,153 \pm 0,003) \cdot 10^{-6} \text{ eV}.$$

#### c) Messungen am System Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> – HfF<sub>4</sub>

Der Kristalltyp des HfF<sub>4</sub> ist noch nicht eindeutig bestimmt worden. Die in Abb. 3 dargestellte Messung zeigt eine nur schwach ausgebildete elektrische Hyperfeinstrukturaufspaltung. Der Angleich ergibt

$$\hbar \omega_E = +(0,107 \pm 0,002) \cdot 10^{-6} \text{ eV}$$

und

$$\eta \approx 0.$$

Die Wechselwirkungsenergie ist kleiner als im HfO<sub>2</sub> und der elektrische Feldgradient hat das entgegengesetzte Vorzeichen.

#### d) Messungen am System Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> – Hafniummetall

Hafniummetall kristallisiert in der hexagonal dichtesten Kugelpackung<sup>4</sup>. Dabei sind alle Ionen gleichberechtigt, und man erwartet einen axialsymmetrischen Feldgradienten. Abb. 4 zeigt das Ergebnis der Messung. Die Wechselwirkung ergibt sich zu

$$\hbar \omega_E = -(0,113 \pm 0,002) \cdot 10^{-6} \text{ eV}$$

mit

$$\eta \approx 0.$$

### Experimente am 93,3 keV-Niveau des Hf<sup>180</sup>

Die Messungen am Hf<sup>180</sup> wurden nur an Verbindungen durchgeführt, die bereits mit dem Hf<sup>176</sup> untersucht worden waren. Als Quelle diente HfO<sub>2</sub>,

<sup>2</sup> S. MARGULIES u. J. R. EHREMAN, Nucl. Instr. Meth. **12**, 131 [1961].

<sup>3</sup> G. A. BYKOV u. PHAM ZUY HIEN, J. Exp. Theor. Phys. USSR **16**, 646 [1963].

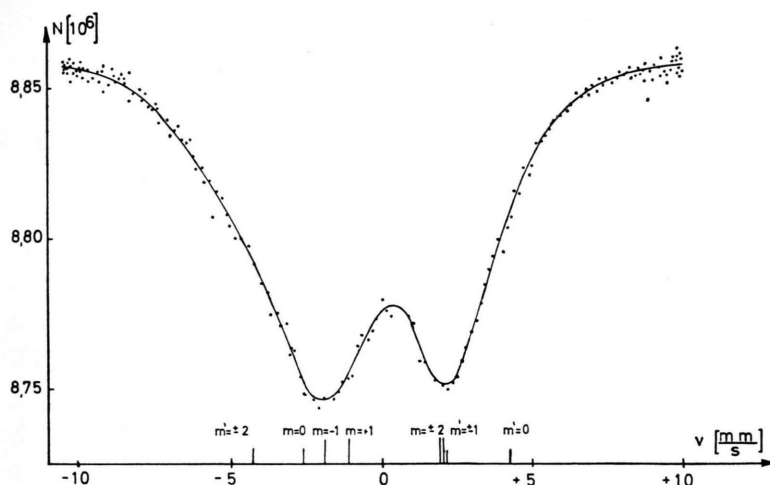


Abb. 1. Mössbauer-Experiment am 88,4 keV-Niveau des Hf<sup>176</sup>. Quelle Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Absorber 120 mg/cm<sup>2</sup> HfN. Die angegliche Kurve wurde unter der Annahme von zwei Feldgradienten berechnet. Auf der Abszisse sind die einzelnen Komponenten für die beiden nicht äquivalenten Gitterplätze markiert.

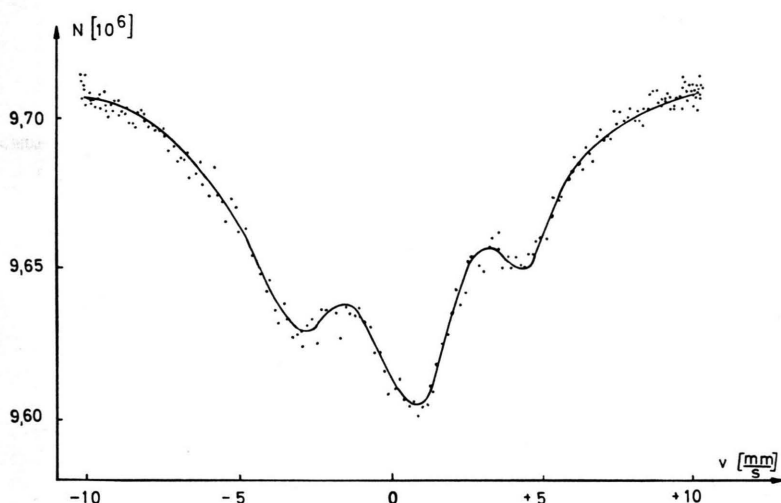


Abb. 2. Messung am 88,4 keV-Niveau des Hf<sup>176</sup>. Quelle Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Absorber 73 mg/cm<sup>2</sup> HfO<sub>2</sub>.

als Absorber wurden HfN, HfO<sub>2</sub> und HfF<sub>4</sub> verwendet. Die Resultate der Auswertung sind in Tab. 2 zusammengestellt. Die Messungen (2) und (3) sind in den Abb. 5 und 6 dargestellt.

Die Messungen (1) und (2) liefern übereinstimmende Ergebnisse für die Wechselwirkungsparameter

im HfO<sub>2</sub>. Diese Werte wurden bei der Auswertung der Messung (3) fest eingegeben. In keinem Fall war es notwendig, axiale Asymmetrie der Feldgradienten anzunehmen.

### Diskussion

Als Ergebnis der Messungen erhält man die elektrischen Wechselwirkungen  $\hbar \omega_E$  der beiden Hafniumisotope in verschiedenen chemischen Verbindungen. Der Wert von  $\hbar \omega_E$  wird durch das Quadrupolmoment des Kerns und den elektrischen Feldgradienten bestimmt. Aus dem Quotienten der Wechselwirkungen für Hf<sup>180</sup> und Hf<sup>176</sup> in der gleichen Substanz erhält man eine modellunabhängige

Messung	Quelle	Absorber	$\hbar \omega_E$ (Quelle) [10 <sup>-6</sup> eV]	$\hbar \omega_E$ (Absorber) [10 <sup>-6</sup> eV]
1	HfO <sub>2</sub>	HfN	$-(0,140 \pm 0,003)$	0
2	HfO <sub>2</sub>	HfO <sub>2</sub>	$-(0,140 \pm 0,003)$	$-(0,140 \pm 0,003)$
3	HfO <sub>2</sub>	HfF <sub>4</sub>	$-(0,140 \pm 0,003)$	$+(0,097 \pm 0,004)$

Tab. 2. Meßergebnisse für die Experimente am 93,3 keV-Niveau des Hf<sup>180</sup>. In allen Fällen wurden axialsymmetrische Feldgradienten angenommen.

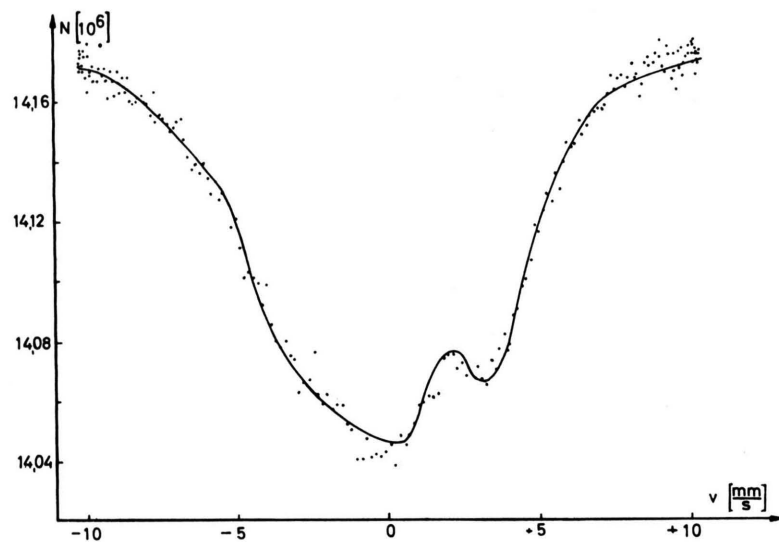


Abb. 3. Messung am 88,4 keV-Niveau des  $\text{Hf}^{176}$ . Quelle  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ ,  
Absorber  $250 \text{ mg/cm}^2 \text{ HfF}_4$ .

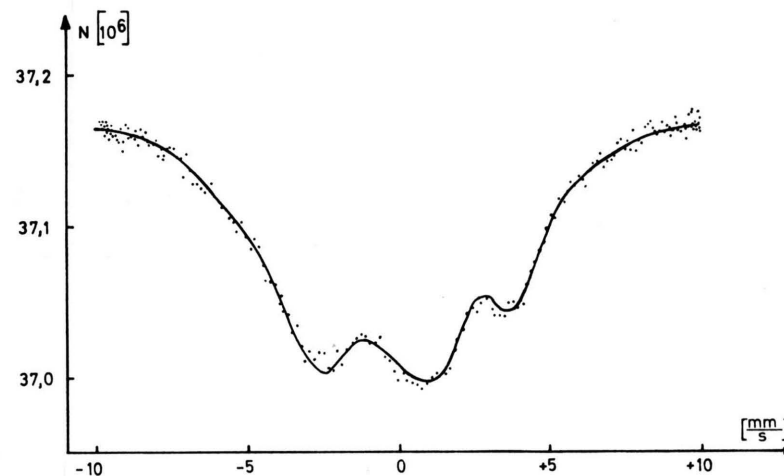


Abb. 4. Messung am 88,4 keV-Niveau des  $\text{Hf}^{176}$ . Quelle  $\text{Lu}_2\text{O}_3$ ,  
Absorber  $80 \text{ mg/cm}^2$  Hafniummetall.

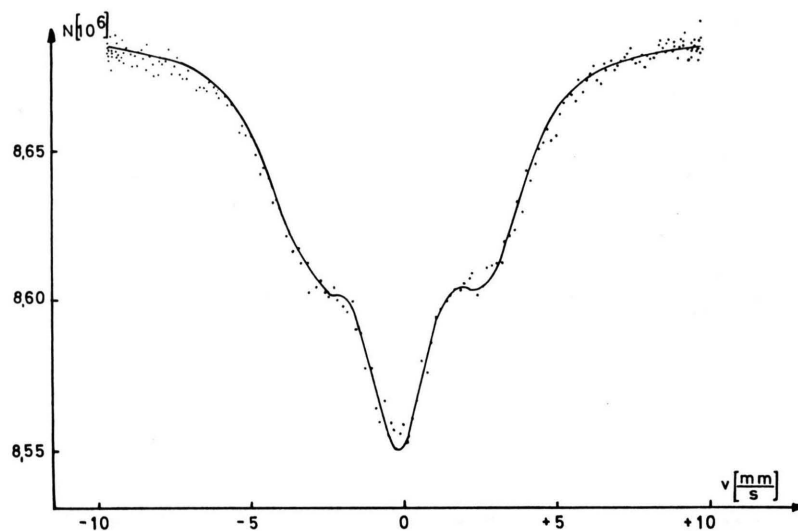


Abb. 5. Mössbauer-Experiment am 93,3 keV-Niveau des  $\text{Hf}^{180}$ .  
Quelle  $\text{HfO}_2$ , Absorber  $20,5 \text{ mg/cm}^2 \text{ HfO}_2$ .

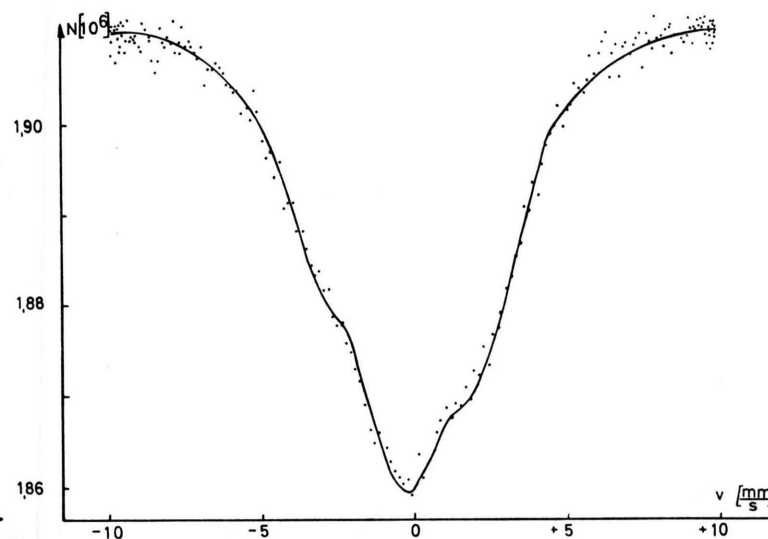


Abb. 6. Messung am 93,3 keV-Niveau des  $\text{Hf}^{180}$ . Quelle  $\text{HfO}_2$ ,  
Absorber  $250 \text{ mg/cm}^2 \text{ HfF}_4$ .

Information über das Verhältnis der Quadrupolmomente der beiden Isotope. Das Ergebnis kann mit dem entsprechenden modellabhängigen Wert verglichen werden, den man aus Messungen der reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten<sup>5</sup> ableiten kann. Tab. 3 gibt eine Zusammenstellung der Daten.

	$\hbar\omega_E(\text{Hf}^{176})$ [10 <sup>-6</sup> eV]	$\hbar\omega_E(\text{Hf}^{180})$ [10 <sup>-6</sup> eV]	$\frac{Q(\text{Hf}^{176})}{Q(\text{Hf}^{180})}$	$\left[\frac{B(E2)_{176}}{B(E2)_{180}}\right]^{1/2}$
HfO <sub>2</sub>	-(0,153 ± 0,003)	-(0,140 ± 0,003)	1,09 ± 0,02	
HfF <sub>4</sub>	+(0,107 ± 0,002)	+(0,097 ± 0,004)	1,11 ± 0,03	
		Mittelwert:	1,10 ± 0,02	1,10 ± 0,07

Tab. 3. Vergleich der gemessenen elektrischen Wechselwirkungen für Hf<sup>176</sup> und Hf<sup>180</sup> und Verhältnis der Quadrupolmomente. Die B(E2)-Werte entstammen der Ref. <sup>5</sup>.

	$V_{zz}$ [10 <sup>17</sup> V/cm <sup>2</sup> ]	$\eta$
Hf in Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-21,7 ± 1,8	0,313 ± 0,010
Hf in Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	+41,7 ± 3,5	~ 0
Hf in HfO <sub>2</sub>	+17,7 ± 1,4	~ 0
Hf in HfF <sub>4</sub>	-12,4 ± 1,0	~ 0
Hf in Hf-Metall	+13,0 ± 1,1	~ 0

Tab. 4. Elektrische Feldgradienten für verschiedene Hafniumverbindungen. Bei der Berechnung wurde  $Q(\text{Hf}^{176}) = -(2,08 \pm 0,10)b$  angenommen.

Das direkt bestimmte Verhältnis der Quadrupolmomente stimmt innerhalb der Meßgenauigkeit mit dem modellabhängigen Wert überein. Es sollte möglich sein, die Genauigkeit der aus den MÖSSBAUER-Experimenten ermittelten Ergebnisse durch Relativmessungen noch wesentlich zu steigern.

Da das kollektive Modell die Eigenschaften niedrig angeregter Niveaus der untersuchten Kerne gut beschreibt, erscheint es sinnvoll, aus den gemessenen Wechselwirkungsenergien die elektrischen Feldgradienten in den verschiedenen Verbindungen zu berechnen. Mit  $Q(\text{Hf}^{176}) = -(2,08 \pm 0,10)b$  (s. Anm. <sup>5</sup>) erhält man die in Tab. 4 zusammengestellten Werte.

Wir danken Herrn Prof. W. JENTSCHKE für seine stetige Unterstützung dieser Untersuchungen. Das Bundesministerium für Wissenschaftliche Forschung ermöglichte die Experimente durch die Bereitstellung von Sachmitteln.

<sup>4</sup> LANDOLT-BÖRNSTEIN, I. Band, Atom- und Molekularphysik, 4. Teil Kristalle (1955, 6. Auflage).

<sup>5</sup> O. HANSEN, M. C. OELSEN, O. SKILBREID u. B. ELBEK, Nucl. Phys. **25**, 634 [1961].