

Anisotropie der Kernresonanzfluoreszenzausbeute an Si^{28} mit Aluminium-Einkristallquellen

J. KALUS und H. J. THALER

Physik-Department der Technischen Hochschule München

(Z. Naturforsch. 23 a, 283—287 [1968]; eingegangen am 16. November 1967)

Unter Ausnutzung einer β - γ -Zerfallskaskade kann an dem 1,772 MeV-Niveau von Si^{28} Kernresonanzfluoreszenz (KRF) beobachtet werden. Die Anisotropie der KRF-Ausbeute, die infolge der richtungsabhängigen Abbremsung der zerfallenden Siliciumkerne (Energie bis 215 eV) in einem Aluminium-Einkristall zu erwarten ist, wurde experimentell gefunden. In einem Richtdiagramm für die (110)-Ebene ergaben sich Schwankungen der KRF-Ausbeute bis zu 13%. Der mit einem verbesserten Hartkugelmodell unter qualitativer Berücksichtigung der Abbremsung berechnete Verlauf der KRF-Ausbeute stimmt mit dem gemessenen Verlauf befriedigend überein.

Grundlagen

Kernresonanzfluoreszenz ist nur dann möglich, wenn der Rückstoßenergieverlust, der bei der Absorption bzw. Emission von γ -Quanten auftritt, durch eine Doppler-Verschiebung der γ -Energie kompensiert wird¹. Der Rückstoßenergieverlust bei γ -Zerfall ist gegeben durch:

$$E_R = E_0^2 / 2 M c^2 \quad (1)$$

(E_0 = Zerfallsenergie, M = Kernmasse, c = Lichtgeschwindigkeit).

Im allgemeinen ist er wesentlich größer als die Absorptionslinienbreite Δ , die durch die thermische Bewegung der Absorberkerne bestimmt ist.

Eine Kompensation durch Doppler-Effekt erhält man, wenn die zerfallenden Kerne mit der Geschwindigkeit V_{res} auf den Absorber zufliegen:

$$V_{\text{res}} = c(2 E_R / E_0). \quad (2)$$

Kernrückstoßgeschwindigkeiten in der Größenordnung von V_{res} treten auf, wenn das angeregte Kernniveau durch eine Kernreaktion oder einen Zerfall bevölkert wird. Ist die Lebensdauer τ der zerfallenden Kerne ausreichend kurz, so ist die Intensität der durch Doppler-Effekt stark verbreiterten Emissionslinie im Bereich der Absorptionslinie genügend hoch, um KRF-Experimente zu ermöglichen.

In dieser Arbeit wird über KRF-Untersuchungen an dem 1,772 MeV-Niveau von Si^{28} berichtet, das durch β -Zerfall von Al^{28} bevölkert wird. Die Abb. 1 zeigt das Niveauschema mit den wichtigsten Daten. Wegen des kontinuierlichen β -Spektrums ist auch das Geschwindigkeitsspektrum der zerfallenden Si^{28} -Kerne in der Quelle kontinuierlich. Die maximale

Rückstoßgeschwindigkeit beträgt $3,8 \cdot 10^6$ cm/s (Rückstoßenergie 215 eV), das entspricht einer maximalen Doppler-Verschiebung der γ -Energie von 228 eV.

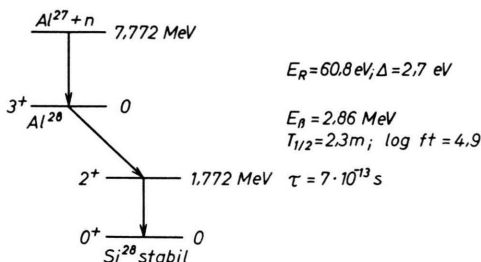


Abb. 1. Niveauschema.

Die KRF-Ausbeute, d. h. die Zahl N der in einem Streuexperiment nachgewiesenen resonant gestreuten Photonen, ist bis auf Proportionalitätsfaktoren gegeben durch:

$$N = \int N(E) \sigma(E) dE. \quad (3)$$

$N(E)$ ist die Emissionswahrscheinlichkeit für γ -Quanten mit der Energie E , $\sigma(E)$ der energieabhängige Wirkungsquerschnitt für Kernresonanzfluoreszenzstreuung. Da sich $N(E)$ wesentlich langsamer mit E ändert als $\sigma(E)$, gilt:

$$N = N(E_r) \int \sigma(E) dE = \text{const} \cdot N(E_r) \quad (4)$$

mit $E_r = E_0 + E_R$. $N(E_r)$ ist proportional zur Zahl der Kerne, deren Geschwindigkeitskomponente in Richtung Streuer beim Zerfall gleich V_{res} ist. Allgemein gilt:

$$N(E_r) \sim \int \left[H(V_0) \int \exp(-t/\tau) \right. \quad (5)$$

$$\left. \cdot \frac{\delta(t-t'(V_{\text{res}}, \vec{V}_0))}{\left| \frac{dV}{dt} \right|_{t=t'(V_{\text{res}}, \vec{V}_0)}} dt \right] d^3V_0.$$

¹ F. R. METZGER, Progr. Nucl. Phys. 7, 53 [1959].



Die Lebensdauer τ des angeregten Niveaus beträgt $7 \cdot 10^{-13} \text{ sec}^2$.

$H(V_0)$ ist die Verteilung der Anfangsgeschwindigkeiten (Rückstoßspektrum aus dem β -Zerfall). $t'(V_{\text{res}}, V_0)$ ist die Zeit, in der ein Kern mit der Anfangsgeschwindigkeit V_0 soweit abgebremst wird, daß seine Geschwindigkeitskomponente in Richtung Streuer den Wert V_{res} hat. Bei den vorliegenden kleinen Rückstoßenergien hängt die Abbremsung und damit die KRF-Ausbeute der Atome sehr stark von der Struktur der mikroskopischen Umgebung ab, in der die Rückstoßkerne abgebremst werden³.

Experiment

Die prinzipielle Anordnung zur Messung der KRF-Ausbeute in einem Streuexperiment wurde bereits in einer früheren Arbeit behandelt⁴. Abb. 2 zeigt einen Querschnitt durch die Versuchsanordnung.

Als Quellen wurden zylindrische Aluminium-Einkristalle von etwa 20 mm Durchmesser und 16 mm Höhe verwendet; die Zylinderachse fiel mit einer [110]-Richtung zusammen. Zur Aktivierung in der Rohrpostbestrahlungsanlage des FRM wurden die Proben in Rohrpostkapseln aus Polyäthylen eingebaut. Nach einer Bestrahlungszeit von 3 bis 4 Minuten (Nennaktivität 6 Curie) konnten sie durch eine Rohrpostleitung direkt zur Meßanordnung befördert werden, wo sie aufgefangen, zentriert und orientiert wurden.

Der Resonanzstreuer bestand aus einer ausgehärteten Mischung von Siliciumpulver und Araldit. Er war $20 \times 20 \text{ cm}^2$ groß und hatte eine Massenbelegung von $(4,9 \pm 0,1) \text{ g Silicium/cm}^2$.

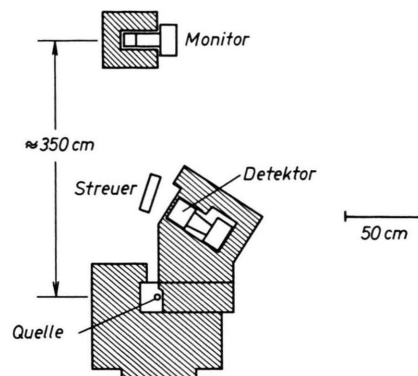


Abb. 2. Querschnitt durch die Versuchsanordnung.

Die resonant gestreuten γ -Quanten wurden mit einem $5'' \times 4''$ -NaI(Tl)-Szintillationsdetektor nachgewiesen, der an eine konventionelle Elektronik angeschlossen war. In Abb. 3 sind die mit einem Vielkanalanalysator erhaltenen Impulshöhenspektren dargestellt.

Zur Messung der Anisotropie der KRF-Ausbeute wurden die Einkristallproben mit einer Drehvorrichtung kontinuierlich um ihre Achse gedreht (Drehachse = [110]-Richtung, Umlaufzeit 5 Sekunden). Eine Schlitzscheibe, die sich synchron mit der Quelle drehte und von einer Lichtschranke abgetastet wurde, teilte den Vollwinkel in 100 etwa gleich große Winkelintervalle (mittlere Länge = $3,6^\circ$, Teilfehler $< 2\%$).

Die Streuraten bei Verwendung des Resonanzstreuers wurden für die einzelnen Winkelintervalle getrennt in 100 Speicherkanälen eines als Multiscalers betriebenen Vielkanalanalysators registriert. Eine Einzelmessung umfaßte 40 Umläufe, das entspricht etwa einer mittleren Lebensdauer der Al^{28} -Kerne in der Quelle.

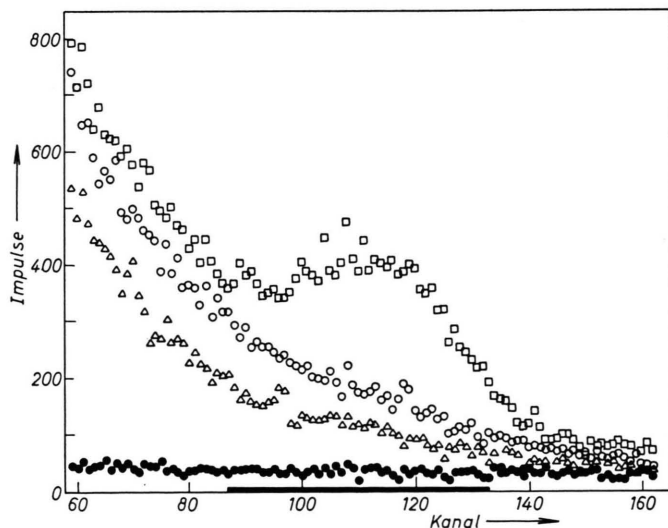


Abb. 3. Spektren mit verschiedenen Streuern in je 3 Minuten; \square mit Resonanzstreuer, \circ mit Vergleichsstreuer, \triangle ohne Streuer, \bullet Untergrund.

² S. J. SKORKA u. T. W. RETZ-SCHMIDT, Nucl. Phys. **46**, 225 [1963].

³ F. JÄHNIG u. J. KALUS, Z. Naturforschg. **20 a**, 387 [1965].

⁴ J. KALUS, J. NEUHAUSER u. E. PÜCKERT, Z. Naturforsch. **22 a**, 788 [1967].

Die Ermittlung der nichtresonanten Streurate erfolgte mittels eines auf gleiche Compton-Streuung angepaßten Vergleichsstreuers aus Reinaluminium in einer getrennten Messung. Durch Subtraktion der nichtresonanten Streurate von der Gesamtsstreurate (bei Verwendung des Resonanzstreuers) erhält man die KRF-Ausbeute. Bei jeder Einzelmessung ergibt sich ein vollständiges Richtdiagramm der KRF-Ausbeute für alle Orientierungen in der (110)-Ebene, in der die drei Hauptrichtungen [100], [110] und [111] liegen.

Nach der Korrektur der unterschiedlichen Intervallängen und des Aktivitätsabfalls während einer Umdrehung ergeben sich Impulszahlen R_n , die proportional sind zu den Mittelwerten der KRF-Ausbeuten in den durch n gekennzeichneten Winkelintervallen, gemittelt über den endlichen Streuerräumwinkel. Die zusammengefaßten Ergebnisse aus insgesamt 46 Einzelmessungen mit den mittleren Fehlern sind aus Abb. 4 zu entnehmen. Bei den vorliegenden Impulszahlen sind die Fehler ausschließlich durch die Zählratenstatistik gegeben.

Durch Entfaltung (in einer Dimension) kann aus den Meßwerten R_n die relative Emissionswahrscheinlichkeit $N(E_r, \alpha)$ als Funktion der durch den Polarwinkel α gekennzeichneten Orientierung in der (110)-Ebene ermittelt werden (die Richtung $\alpha = 0$ entspricht einer [110]-Richtung).

Zur Entfaltung stellt man $N(E_r, \alpha)$ durch eine trigonometrische Reihe dar:

$$N(E_r, \alpha) = \sum_{m=0}^{\infty} a_m \cdot \cos(2m\alpha). \quad (6)$$

Aus Symmetriegründen treten nur Glieder mit $\cos(2m\alpha)$ auf. Die a_m sind Entwicklungskoeffizienten. Durch Faltung mit der experimentell ermittelten normierten Nachweiswahrscheinlichkeit $NW(\alpha)$ am Streuer und Detektor ergibt sich die gemittelte Emissionswahrscheinlichkeit $\bar{N}(E_r, \alpha)$:

$$\begin{aligned} \bar{N}(E_r, \alpha) &= \int N W(\alpha') N(E_r, \alpha + \alpha') d\alpha' \\ &= a_0 + \sum_{m=1}^{\infty} [c_m \cos(2m\alpha) + s_m \sin(2m\alpha)] \end{aligned} \quad (7)$$

mit

$$\begin{aligned} c_m &= a_m \int \cos(2m\alpha') N W(\alpha') d\alpha'; \\ s_m &= -a_m \int \sin(2m\alpha') N W(\alpha') d\alpha'. \end{aligned}$$

Die Meßwerte R_n sind gegeben durch:

$$R_n = \int_{\alpha_n}^{\alpha_{n+1}} \bar{N}(E_r, \alpha) d\alpha. \quad (8)$$

In einer linearen Ausgleichsrechnung (*Least-Square-Fit*) wurden die Koeffizienten a_m so bestimmt, daß die berechneten R_n möglichst gut mit den gemessenen übereinstimmen. Es zeigt sich, daß für eine Fit-Reihe nach Formel (6) mit 7 Gliedern die Schwankungen der beim Fit berechneten R_n minimal werden. Es ist deshalb sinnvoll, die Fit-Reihe nach 7 Gliedern abzubauen. Der mittlere Fehler der Fit-Reihe, in dem die Fehler der Meßgrößen voll erfaßt sind, ist dann kleiner als 1,1%. In Abb. 4 ist der Verlauf von $\bar{N}(E_r, \alpha)$ und $N(E_r, \alpha)$, der durch Anpassung erhalten wurde, bereits eingezeichnet.

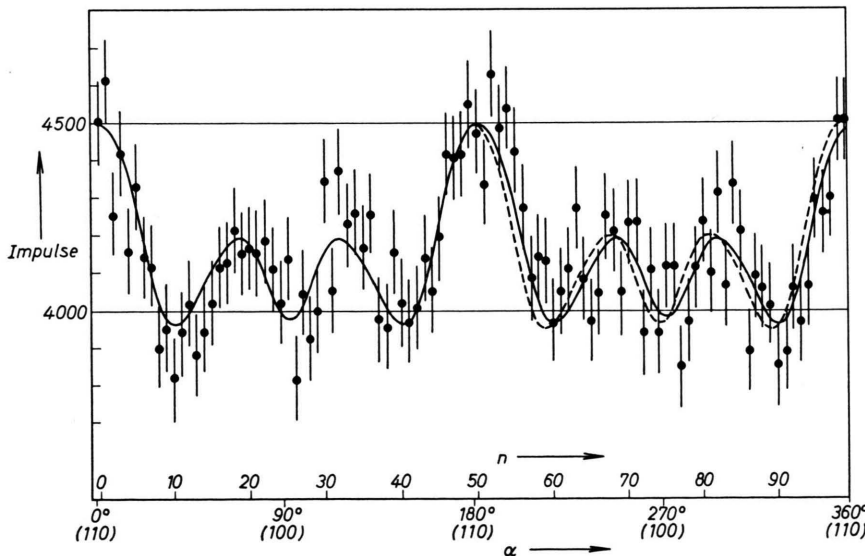


Abb. 4. Meßwerte R_n ; — Fit-Kurve $\bar{N}(E_r, \alpha)$; - - - entfaltete Fit-Kurve $N(E_r, \alpha)$ (7 Parameter).

Abbremsmodelle

Zur exakten Bestimmung von $N(E_r, \alpha)$ nach Formel (5) muß der Geschwindigkeitsverlauf der Rückstoßkerne für alle möglichen Anfangsgeschwindigkeiten V_0 bekannt sein. Ihre Berechnung erfordert die Lösung eines Vielteilchenproblems, die exakt nicht durchführbar ist. Von numerischen Lösungsversuchen nach dem Verfahren von VINEYARD und ERGINSOY⁵ wurde abgesehen, da diese Methode im vorliegenden Fall zu aufwendig ist. Statt dessen wurde versucht, $N(E_r, \alpha)$ mit Hilfe eines einfachen Abbremsmodells zu berechnen⁴.

Bezüglich der Einzelheiten der Rechnung sei auf eine frühere Arbeit verwiesen⁴.

Das einfache Abbremsmodell berücksichtigt, daß Rückstoßteilchen, die keine Hartkugelstöße machen, beim Durchfliegen von Schalen nächster Nachbarn abgebremst werden. Machen die Rückstoßatome Hartkugelstöße, so soll ihre Geschwindigkeit auf Null abnehmen. Mit diesem verbesserten Hartkugelmodell wurde der Verlauf von $N(E_r, \alpha)$ für verschiedene Stoßradien RA (RA = Summe der Hartkugelradien von Rückstoßteilchen und Gitterteilchen) berechnet. Die Abb. 5 zeigt die Ergebnisse für das Grundgebiet $0^\circ < \alpha < 90^\circ$. Es wurden dabei der Energieverlust beim Durchfliegen der Schalen von nächsten und drittnächsten Nachbarn variiert. Richtwerte für diesen Energieverlust lassen sich einer Arbeit von ANDERSEN und SIGMUND entnehmen⁶.

Der Beitrag der abgebremsten Kerne zu $N(E_r, \alpha)$ läßt sich damit nur zu einem Teil erfassen. Die Übereinstimmung mit den Meßwerten ist nicht sehr gut. Eine qualitative Verbesserung ist durch Einführung eines effektiven Rückstoßspektrums möglich, in dem Kerne mit kleineren Rückstoßgeschwindigkeiten stärker vertreten sind.

Eine einfache Möglichkeit, vom ursprünglichen Rückstoßspektrum zu einem solchen Effektivspektrum zu gelangen, stellt die Verschiebung des Ausgangsspektrums zu niedrigeren Energien dar. Mit diesem Verfahren ergibt sich, wie Abb. 5 zeigt, eine befriedigende Übereinstimmung des berechneten mit dem gemessenen Verlauf von $N(E_r, \alpha)$. Die Größe der Spektrumsverschiebung wurde als Parameter behandelt, eine Variation derselben um $\pm 50\%$ ändert

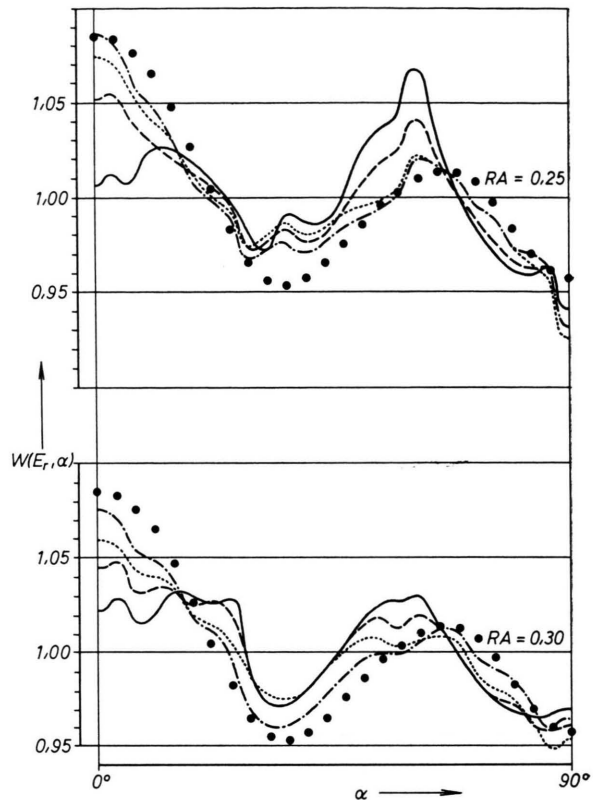


Abb. 5. ——— keine Energieverluste; ● Meßwerte (s. Abb. 4); — — — Energieverluste von 20 eV bei 0,7 GK, 30 eV bei 1,2 GK; ····· Energieverluste von 50 eV bei 0,7 GK, 30 eV bei 1,2 GK; — · — · Spektrumsverschiebung um 30 eV, Energieverluste von 30 eV bei 0,7 GK, 20 eV bei 1,2 GK.

die Übereinstimmung nicht wesentlich. Dagegen erhält man nur für einen Stoßradius RA von 0,25 bis 0,30 Gitterkonstanten gute Übereinstimmung.

Die Interpretation des Stoßradius als minimalen Kollisionsabstand r_{coll} (Head-On-Radius) stellt eine Möglichkeit dar, das Wechselwirkungspotential zwischen dem Rückstoßteilchen und einem Gitterteilchen (das praktisch mit dem zwischen zwei Gitterteilchen identisch ist) zu testen. Es sollte gelten:

$$V(r_{\text{coll}}) = E_{\text{CM}}, \quad (9)$$

wobei E_{CM} eine mittlere kinetische Energie des Rückstoßteilchens im Schwerpunktsystem ist, für die man etwa ein Drittel der maximalen Rückstoßenergie annehmen kann. Mit dem von ANDERSEN und SIGMUND in⁷ angegebenen Ansatz für ein universelles Born-

⁵ J. B. GIBSON, A. N. GOLAND, M. MILGRAM u. G. H. VINEYARD, Phys. Rev. **120**, 1229 [1960]. — C. ERGINSOY, G. H. VINEYARD u. A. ENGLERT, Phys. Rev. **133**, A 595 [1964].

⁶ H. H. ANDERSEN u. P. SIGMUND, Kgl. Danske Vidensk. Selskab., Mat.-Fys. Medd. **34**, No. 15 [1955].

⁷ H. H. ANDERSEN u. P. SIGMUND, Risø Report No. 103, May 1965.

Mayer-Potential ergab sich für r_{coll} ein Zahlenwert, der etwa um 50% kleiner ist als der experimentell ermittelte Stoßradius. Der Grund für diese Diskrepanz ist noch nicht geklärt. Es ist möglich, daß das dort angeführte Potential für kleine Abstände nicht korrekt ist, da es auch für die Schwellenenergie für Fehlstellenerzeugung einen viel zu kleinen Wert liefert (3 eV statt 16 eV⁸).

Eine genauere Interpretation der vorliegenden Meßergebnisse über die Anisotropie der KRF-Ausbeute an Einkristallen erfordert eine ausführliche Theorie der Abbremsung von niederenergetischen Atomen in einem Kristallgitter. Eine solche Theorie existiert noch nicht, da die mathematischen Schwierigkeiten zu groß sind.

Herrn Professor MAIER-LEIBNITZ danken wir für die Unterstützung bei der Arbeit. Unser Dank gilt auch der Leitung und der Bestrahlungsgruppe des Forschungsreaktors München.

⁸ G. W. ISLER, H. I. DAWSON, A. S. MEHNER u. J. W. KAUFMANN, Phys. Rev. **146**, 468 [1966].

Messung der Energiebreiten von Röntgen-Niveaus mit Hilfe der Auger-Elektronenspektroskopie

W. MEHLHORN, D. STALHERM und H. VERBEEK *

Institut für Kernphysik der Universität Münster

(Z. Naturforsch. **23 a**, 287—294 [1968]; eingegangen am 5. November 1967)

From the Auger transitions $KL_{2,3}L_{2,3}(^1D_2)$ of neon and $L_3M_{2,2}M_{2,3}(^1D_2)$ of argon the level widths $\Gamma(K)$ of neon and $\Gamma(L_3)$ and $\Gamma(L_2)$ of argon have been determined by folding Lorentzian distributions with the spectrometer function. The values found are: $\Gamma(K) = (0.15 \pm 0.03)$ eV, $\Gamma(L_3) = \Gamma(L_2) = (0.16 \pm 0.02)$ eV. From the level width $\Gamma(K)$ of neon and the relative intensities of the KLL Auger lines of neon, determined very recently, absolute transition probabilities of the KLL Auger transitions of neon have been calculated to be (in units of $10^{-3} e^2/\hbar a_0 = 4.1 \cdot 10^{13} \text{ sec}^{-1}$):

$$KL_1L_1(^1S_0) = 0.35 \pm 0.07; \quad KL_1L_{2,3}(^1P_1) = 0.96 \pm 0.19; \quad KL_1L_{2,3}(^3P) = 0.35 \pm 0.07; \\ KL_{2,3}L_{2,3}(^1S_0) = 0.55 \pm 0.11; \quad KL_{2,3}L_{2,3}(^1D_2) = 3.28 \pm 0.66; \quad KL_{2,3}L_{2,3}(^3P_{0,2}) = 0.$$

Whereas the experimental total transition probability KLL is in good agreement with theoretical values of the transition probability for $Z=10$, determined by extrapolation of Callan's values for $Z \geq 12$ and of Archard's values for $Z=11, 12, 15, 16, 17, 18$, the experimental transition probabilities of the fine structure components do not agree with Callan's values and agree only in some cases with Archard's values.

Ist ein Atom in einer inneren Schale ionisiert, so befindet es sich in einem Zustand m positiver Energie E_m gegenüber dem Grundzustand. Über einen Röntgen- oder Auger-Prozeß zerfällt dieser Zustand m in einen Zustand n mit der Energie E_n . Die Energiedifferenz $E_m - E_n$ wird mit einer Lorentz-Verteilung

$$I(E) \sim \frac{\Gamma_{m,n}}{(E - E_m + E_n)^2 + \frac{1}{4} \Gamma_{m,n}^2} \quad (1)$$

abgegeben¹. Die natürliche Halbwertsbreite der Röntgen- oder Auger-Linie ist gegeben durch

$$\Gamma_{m,n} = \Gamma_m + \Gamma_n, \quad (2)$$

wobei Γ_m und Γ_n die Energiebreiten der Zustände m und n sind. Ist Γ_n bekannt, so kann aus der na-

türlichen Linienbreite $\Gamma_{m,n}$ die Energiebreite Γ_m und damit auch die mittlere Lebensdauer $\tau_m = \hbar/\Gamma_m$ des Zustandes m bestimmt werden.

Energiebreiten von Röntgen-Niveaus wurden bisher mit Hilfe der Röntgen-Spektroskopie² gemessen, in einigen Fällen auch mittels der Elektronenspektroskopie bei der Konversion von Kern- γ -Strahlung³. Für Röntgen-Niveaus mit kleiner Energie E_m ($< 1 \text{ keV}$) ist aber die Fluoreszenzausbeute sehr klein⁴. Hier ist es vorteilhafter, die Energiebreiten aus den natürlichen Linienbreiten geeigneter Auger-Linien zu bestimmen.

In den Fällen, wo die Fluoreszenzausbeute gegenüber der Auger-Ausbeute praktisch zu vernachlässi-

* Jetzt im Institut für Plasmaphysik, Garching bei München.

¹ V. WEISSKOPF u. E. WIGNER, Z. Phys. **63**, 54 [1930].

² L. G. PARRATT, Rev. Mod. Phys. **31**, 616 [1959].

³ K. SIEGBAHN u. K. EDVARDSON, Nucl. Phys. **1**, 137 [1956]. — R. L. GRAHAM, G. T. EWAN u. J. S. GEIGER, Nuclear Instr.

Methods **9**, 245 [1960]. — J. H. DIJKSTRA u. C. DE VRIES, Nucl. Phys. **23**, 524 [1961]. — J. S. GEIGER, R. L. GRAHAM u. J. S. MERRITT, Nucl. Phys. **48**, 97 [1963].

⁴ R. W. FINK, R. C. JOPSON, H. MARK u. C. D. SWIFT, Rev. Mod. Phys. **38**, 513 [1966].