

Einfluß der Zusammensetzung von Natrium-Legierungen auf die Kernresonanzfluoreszenzausbeute von eingebauten Mg^{24} -Kernen

B. C. DUTTA, J. KALUS *, K. SCHRECKENBACH und M. A. SHAUKAT **

Physik-Departement der Technischen Hochschule München

(Z. Naturforsch. 25 a, 736—739 [1970]; eingegangen am 7. Februar 1970)

Beim Zerfall von Na^{24} entstehen angeregte niederenergetische Mg^{24} -Rückstoßkerne mit einer kinetischen Energie bis zu ca. 170 eV.

Die Eigenschaften der nächsten Umgebung dieser Rückstoßkerne beeinflusst in Festkörpern oder Flüssigkeiten stark deren Abbremsung. Für verschiedene Temperaturen von Na—Bi-, Na—Pb- und Na—Li-Legierungen und damit für verschiedene mikroskopische Umgebungen der Mg^{24} -Rückstoßkerne wurde die relative Kernresonanzfluoreszenz(KRF)-Ausbeute, die von der Abbremsung der Rückstoßkerne abhängig ist, gemessen. Es ergaben sich stetige und unstetige Änderungen in der KRF-Ausbeute, die bei der Na—Bi-Legierung bis zu 50% betragen. Die Änderungen werden an Hand der Phasendiagramme erläutert.

I. Einleitung

Atome mit einer kinetischen Energie im Bereich von einigen hundert eV oder weniger haben in kondensierter Materie eine Reichweite, die in der Größenordnung des Atomabstandes liegt.

Es ist deshalb zu vermuten, daß die Mikrostruktur in der nächsten Umgebung solcher Atome einen großen Einfluß auf deren Abbremsung, d. h. auf die Geschwindigkeitsfunktion $V(t)$, hat, wobei t die Zeit ist.

Die Mikrostruktur hängt nun bei Legierungen oft in einfacher Weise von der Temperatur ab. In den folgenden Kapiteln wird über die Erzeugung von Mg^{24} -Rückstoßkernen mit einer Energie bis ca. 170 eV und dem Zusammenhang zwischen $V(t)$ und der Kernresonanzfluoreszenz(KRF)-Ausbeute berichtet. Weiterhin erfolgt die Beschreibung des experimentellen Aufbaues und eine Analyse der Meßergebnisse, die an einigen Na-Legierungen vorgenommen wurden.

II. Erzeugung von Mg^{24} -Rückstoßkernen

Durch Bestrahlung von Na^{23} mit langsamen Neutronen wird das radioaktive Isotop Na^{24} erzeugt. Dieses zerfällt mit einer Halbwertszeit von 15 Stunden unter Emission eines β -Teilchens in den angeregten Zustand von Mg^{24} . Der Zerfall in den Grundzustand des Mg^{24} erfolgt durch Emission zweier γ -Quanten in Kaskade (s. Abb. 1).

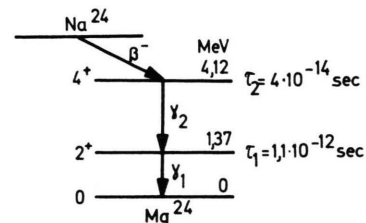


Abb. 1. Termschema von Mg^{24} .

Die 1,37 MeV- γ -Linie, wie übrigens auch die hier weniger interessierende 2,75 MeV- γ -Linie, ist auf Grund des Doppler-Effektes verbreitert, da sowohl beim β -Zerfall, als auch bei Emission des 2,75 MeV-Quants Rückstoßenergie auf den Kern übertragen wird. Da die Lebensdauer τ_2 des 4,12 MeV-Niveaus einen sehr ungünstigen Wert hat (sie ist nicht so kurz, daß die Rückstoßgeschwindigkeit der Kerne nach dem β -Zerfall und vor der Emission des 2,75 MeV-Quants sich nicht durch Abbremsung geändert hätte und nicht so lange, daß die Rückstoßgeschwindigkeit bei der Emission des 2,75 MeV-Quants überwiegend schon Null wäre), läßt sich das Geschwindigkeitsspektrum $H[V(0)]$ der Kerne zur Zeit $t=0$, die definiert ist als die Zeit, bei der die Emission des 2,75 MeV-Quants erfolgt ist, schwer bestimmen. Im Mittel wird die Rückstoßgeschwindigkeit aber in guter Näherung den Wert $V' \approx E_{\gamma 2}/Mc$ haben, wobei M die Masse des Kerns und c die Lichtgeschwindigkeit ist. $H[V(0)]$ wird bei $V \approx V'$ ein ausgeprägtes, nicht zu breites Maximum besitzen. (Bei Vernachlässigung des Einflusses des β -Zerfalles, der Tempe-

* Jetzt Institut Max-von-Laue—Paul-Langevin, F-Grenoble, Frankreich.

** Atomic Energy Center, Lahore, Pakistan.

Sonderdruckanforderungen an Frau D. KOHT, Reaktorstation, D-8046 Garching bei München.



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.

raturbewegung und der Lebensdauer τ_2 könnte man $H[V(0)]$ durch die Funktion

$$H[V(0)] = \delta[V(0) - E_{\gamma 2}/Mc]$$

darstellen.)

Aus V ergibt sich für die maximal mögliche Breite ΔE der 1,37 MeV-Linie, verursacht durch den Doppler-Effekt, ein Wert $\Delta E \approx 2(V/c) E_{\gamma 1} = 340$ eV. Die genaue Form $N(E)$ des Energiespektrums der 1,37 MeV-Linie hängt nun außer von $H[V(0)]$ auch noch stark von der Abbremsung, d. h. der Geschwindigkeit $V(t)$ der Kerne ab¹:

$$N(E) = \frac{c \int_{V_x}^{\infty} H[V(0)] \int_0^T \exp\{-t/\tau_1\} / \{V[t, V(0)]\} dt dV(0)}{E_{\gamma 1} \tau_1 \int_0^{\infty} H[V(0)] dV(0)} \quad (1)$$

mit

$$E = E_{\gamma 1} (1 + V_x/c) - E_{\gamma 1}^2 / (2 M c^2)$$

und

$$V[T, V(0)] = V_x.$$

III. KRF-Ausbeute

Führt man mit der verbreiterten 1,37 MeV-Linie ein KRF-Streuxperiment durch, so ergibt sich für die Anzahl Z der an einem dünnen Mg^{24} -Streuer resonant gestreuten 1,37 MeV-Quanten der Ausdruck²:

$$Z = \text{prop} \int_0^{\infty} N(E) \sigma(E) dE, \quad (2)$$

wobei $\sigma(E)$ der wohlbekannte resonanzartige Wirkungsquerschnitt für KRF-Streuung ist². Der Abstand der Zentren von $N(E)$ und $\sigma(E)$ beträgt $\Delta E' = E_{\gamma 1}/Mc^2 = 84$ eV, ist also kleiner als ΔE , so daß eine Überlappung zwischen $N(E)$ und $\sigma(E)$ stattfindet. Die Breite von $\sigma(E)$ ist 1,4 eV, also wesentlich kleiner als die Breite ΔE von $N(E)$. Gleichung (2) läßt sich dann umschreiben in:

$$Z = \text{prop} N(E_r) \int_0^{\infty} \sigma(E) dE = \text{prop}' N(E_r) \quad (3)$$

da $\int_0^{\infty} \sigma(E) dE$ ebenfalls bekannt ist².

Unter sehr vereinfachenden Annahmen über^{1,3} $V(t)$ ergibt sich nun, daß $N(E_r)$ ungefähr proportional zur Reichweite S der Rückstoßkerne ist. Da S

in kondensierter Materie bei den hier vorliegenden geringen Rückstoßenergien in der Größenordnung des Atomabstandes ist, erwartet man für jede Änderung in der nächsten Umgebung des Rückstoßkernes eine Änderung von S und damit von der KRF-Ausbeute. Solch eine Änderung in der KRF-Ausbeute wurde z. B. bei Anlegung eines Druckes beobachtet⁴. In der hier beschriebenen Arbeit wurde teils sprunghaft, teils kontinuierlich, die Zusammensetzung der nächsten Umgebung des Mg -Rückstoßkernes durch Temperaturänderung von Legierungen (auch über den Schmelzpunkt hinweg) verändert.

IV. Experimenteller Aufbau und Meßergebnisse

Der experimentelle Aufbau der konventionellen Streuanordnung ist aus Abb. 2 zu ersehen. Die Quellen von ca. 1 C Aktivität (Na-Bi-, Na-Pb- und Na-Li-Legierungen), wurden am FRM durch Bestrahlung mit thermischen Neutronen hergestellt. Zur Ausheizung der in V2A-Kapseln von 11 cm Länge verschweißten Legierungen diente ein Ofen. Über die Quellenlänge wurde bei 300 °C ein Temperaturgradient von 4 °C gemessen. Der Resonanzstreuer aus Mg ($30 \times 20 \times 6$ cm) konnte zur Ermittlung des nichtresonanten Untergrundes durch einen Vergleichstreuer aus Al ersetzt werden. Vor dem Na(Tl)-Detektor war ein 2 cm dicker Pb-Absorber zur Schwächung der niederenergetischen Compton-gestreuten γ -Quanten angebracht.

Der Ausgang des 3 in. \times 3 in. NaI(Tl)-Detektor-Systems war mit einem 400 Kanal-RIDL-Impulshöhenanalysator verbunden.

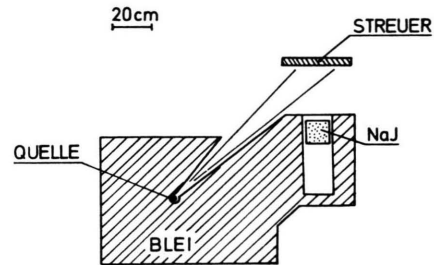


Abb. 2. Experimenteller Aufbau.

In Abb. 3 sind die gemessenen KRF-Ausbeuten für die Na-Bi-, Na-Li- und Na-Pb-Legierungen als Funktion der Temperatur aufgetragen. Die Zusammensetzung der Legierungen geht aus Tab. 1 hervor.

¹ J. B. CUMMING, A. SCHWARZSCHILD, A. W. SUNYAR u. N. T. PORILE, Phys. Rev. **120**, 2128 [1960].

² F. R. METZGER, Progr. Nucl. Phys. **7**, 53 [1959].

³ J. KALUS, Z. Naturforsch. **20 a**, 391 [1965].

⁴ J. KALUS, erscheint demnächst in Phys. Stat. Sol.

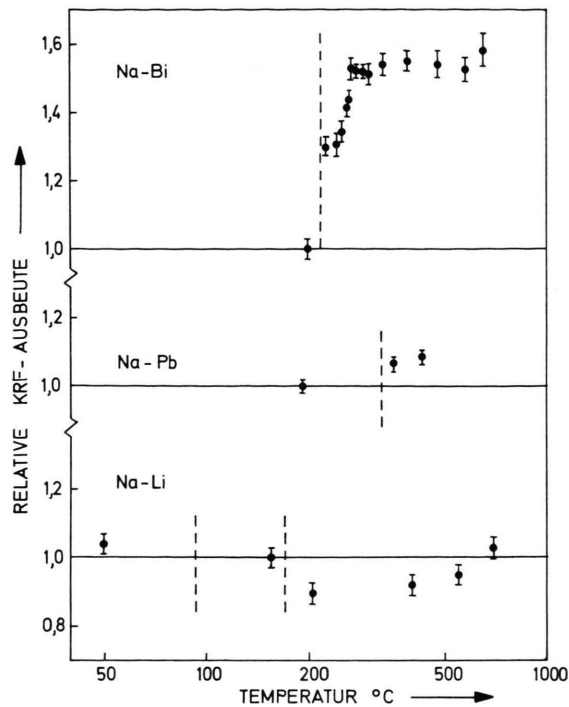


Abb. 3. Relative KRF-Ausbeute für die Na-Bi-, Na-Pb- und Na-Li-Legierung bei verschiedenen Temperaturen. Bei den mit (---) markierten Temperaturen ist eine Unstetigkeit in der KRF-Ausbeute zu erwarten.

Legierung	Atomzahlverhältnis
Na-Bi	Na : Bi = 1 : 20
Na-Pb	Na : Pb = 1 : 20
Na-Li	Na : Li = 1 : 22

Tab. 1.

V. Diskussion

Qualitativ werden nun die Meßergebnisse, im besonderen an der Na-Bi-Legierung, diskutiert. Die Abb. 4 zeigt einen Ausschnitt des Phasendiagrammes von Na-Bi-Legierungen.

a) In der untersuchten Na-Bi-Legierung (5% Na-Atome) sind bis zur eutektischen Temperatur (218 °C) Kristalle der Zusammensetzung NaBi in einer reinen Bi-Matrix eingebettet. Die Umgebung der Mg-Rückstoßatome besteht also in diesem Temperaturbereich aus festem NaBi.

b) Beim Aufheizen über 218 °C hinaus bildet sich eine Schmelze, die sich bis 260 °C mit steigender Temperatur mit Bi-Atomen anreichert. Bei 218 °C beträgt die Na-Konzentration der Schmelze

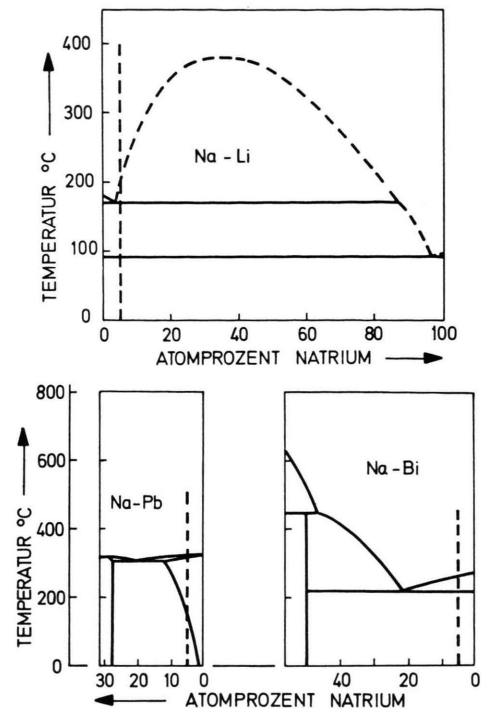


Abb. 4. Ausschnitte aus den Phasendiagrammen der Na-Bi-, Na-Pb- und Na-Li-Legierungen⁷. Die senkrechten gestrichelten Linien geben die Zusammensetzung der hier untersuchten Legierungen an.

23% und nimmt ab 260 °C den konstanten Wert von 5% an.

Man kann nun qualitativ verstehen, wo Änderungen im Abbremsweg S und damit in der KRF-Ausbeute eintreten. Es ist aber schwierig, die Größe dieser Änderung vorauszusagen, da man hierzu genaue Informationen über $V(t)$ benötigt.

Leichter übersehen lassen sich die Einflüsse zweier Grenzfälle von Strukturänderungen auf die KRF-Ausbeute:

1. Werden unter Beibehaltung aller anderen Strukturparameter in der Umgebung des Mg-Rückstoßatoms an Stelle der schweren (Pb, Bi) oder leichten (Li) Atome, die mit Mg nahezu gleichschweren Na-Atome eingebaut, so wird die Abbremsung stärker und die KRF-Ausbeute geringer. Im Mittel kann nämlich bei elastischen Stößen im Fall der Massengleichheit mehr Energie auf den Stoßpartner übertragen werden als bei großen Massendifferenzen.

2. Ändert man nur den mittleren Atomabstand \bar{a} in der Umgebung des Mg-Rückstoßatoms um $\Delta\bar{a}$ (was sich z. B. durch Anwendung von Druck erreichen läßt⁴), so ändert sich die KRF-Ausbeute in

erster Näherung um $\Delta\bar{a}/\bar{a}$, wobei \bar{a} von der gleichen Größenordnung wie der Abbremsweg S ist.

Im allgemeinen spielen sich bei Temperaturänderungen von Legierungen Vorgänge ab, die man als Mischung dieser beiden Grenzfälle auffassen kann. Bei einer Na–Bi- und Na–Pb-Legierung scheint der Einfluß von dem Grenzfall 1 zu dominieren, denn mit abnehmender Na-Konzentration nimmt die KRF-Ausbeute zu. Im Falle der Na–Li-Legierung dagegen dürfte der Einfluß des Grenzfalles 2 ausschlaggebend sein, da mit steigender Li-Konzentration in der Umgebung des Mg-Rückstoßatoms die Packungsdichte der Atome größer wird und die KRF-Ausbeute abnimmt.

Eine theoretisch begründete Voraussage über den strukturabhängigen Verlauf der KRF-Ausbeute ist nur in Sonderfällen möglich⁴. Mit der beschriebenen Methode läßt sich jedoch feststellen, ob bei bestimmten Temperaturen Phasenübergänge auftreten, da dann sprunghafte Änderungen der KRF-Ausbeute eintreten. Da die Meßgenauigkeit für KRF-Experimente im Bereich von einem Prozent und besser liegt, kann man dementsprechend z. B. Änderun-

gen vom lokalen mittleren Abstand \bar{a} zu Nachbaratomen im gleichen Bereich feststellen.

Die Meßtemperaturen wurde bei den Na–Bi- und Na–Li-Legierungen weit über den Schmelzpunkt hinaus erhöht, um evtl. Aufschlüsse über die Korrelationsfunktion $\varrho(r)$ zu erhalten. $4\pi r^2 \varrho(r) dr$ ist dabei die Wahrscheinlichkeit, daß sich im Abstand zwischen r und $r + dr$ um ein herausgegriffenes Atom herum, in unserem Fall um das Mg-Rückstoßatom, ein anderes Atom befindet. Nach einer früher veröffentlichten Arbeit⁵ erwartet man bei einer Änderung von $\varrho(r)$ mit der Temperatur eine Änderung in der KRF-Ausbeute. Entgegen den in Ref.⁵ angegebenen Schlüssen läßt sich aus den vorliegenden Messungen keine Änderung von $\varrho(r)$ in der Schmelze entnehmen. Der sich andeutende Anstieg der KRF-Ausbeute bei Temperaturen über 600 °C stammt vom Einfluß der Na-Gasphase her. Die Probenbehälter waren nämlich nicht vollständig mit der Legierung angefüllt. Da die KRF-Ausbeute von Mg^{24} in Na-Gas um rund den Faktor 50 höher ist⁶ wie in Festkörpern, macht sich bei hohen Temperaturen der hohe Dampfdruck des Natriums in einem Anstieg der KRF-Ausbeute bemerkbar.

⁵ G. HOLTMAYER u. J. KALUS, Phys. Stat. Sol. **21**, 297 [1967].

⁶ S. OFER u. A. SCHWARZSCHILD, Phys. Rev. Letters **3**, 384 [1959].

⁷ Constitution of Binary Alloys. Herausgegeben von M. HANSEN u. K. ANDERKO, McGraw-Hill Book Comp., Inc., New York 1958.