

# Beiträge zur Konversionselektronenkorrelation

Autor(en): **Gimmi, F. / Heer, E. / Scherrer, P.**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Helvetica Physica Acta**

Band (Jahr): **29 (1956)**

Heft II

PDF erstellt am: **13.09.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-112702>

## **Nutzungsbedingungen**

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern. Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

## **Haftungsausschluss**

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

## Beiträge zur Konversionselektronenkorrelation

von F. Gimmi, E. Heer und P. Scherrer (ETH. Zürich).

(1. III. 1956.)

*Summary.* The conversion-electron correlation technique was investigated by measuring the  $\gamma$ - $\gamma$ -,  $\gamma$ - $e_{\bar{K}}$ -,  $e_{\bar{K}}$ - $\gamma$ - and  $e_{\bar{K}}$ - $e_{\bar{K}}$ -correlations of  $\text{Cd}^{111}$ . The results were found to be in good agreement with the theory of BIEDENHARN and ROSE. A study of the  $e_{\bar{K}}$ - $\gamma$ -correlation in  $\text{Hg}^{197}$  led to an unambiguous choice between two possible decay schemas and indicated the spin of the ground state of  $\text{Hg}^{197}$  to be  $1/2$ . Conversion-electron correlation experiments also provided an aid in determining the decay schema of  $\text{Hf}^{181}$ — $\text{Ta}^{181}$ . In both these cases, the  $e^-$ - $\gamma$ -correlation was found to be disturbed by a perturbation which was attributed to the interaction of the magnetic moment with the field of the excited electron shell. To correct the correlation function for the influence of the size of the source, new correction formulas have been calculated.

### 1. Einleitung.

In den letzten Jahren haben zwei Kernmodelle grosse Erfolge verzeichnet: das Einteilchenmodell und das Modell kollektiver Bewegungen (unified model). Beide Modelle machen Aussagen über die Spins der angeregten Niveaus und über die Übergangswahrscheinlichkeiten. Die *Kernspektroskopie* beschafft das experimentelle Material, welches durch Vergleich mit der Theorie erlaubt, diese Modellvorstellungen zu prüfen und zu verbessern.

Eine der Methoden der Kernspektroskopie, welche es gestattet, Spins und relative Übergangswahrscheinlichkeiten gewisser Niveaus zu messen, ist die *Richtungskorrelation* (R. K.). Sie ist überall dort anwendbar, wo ein angeregtes Kernniveau nicht direkt in den stabilen Grundzustand übergeht. Sobald ein solcher Zerfall durch Emission von mindestens zwei sukzessiven Strahlungen vor sich geht, lässt sich die Winkelverteilung der zweiten Strahlung relativ zur ersten messen. Diese Richtungskorrelation ergibt im allgemeinen Aussagen über die beim Zerfall beteiligten Strahlungen und über die Energieniveaus des zerfallenden Kerns.

Die wichtigste und am häufigsten gemessene R. K. ist die  $\gamma$ - $\gamma$ -*Richtungskorrelation* (Fig. 1 a). Koinzidenzmessungen zwischen den beiden sukzessiven  $\gamma$ -Strahlen in Funktion des Winkels, den die

Detektoren mit der Quelle bilden, ergeben die Winkelverteilungsfunktion  $W(\Theta)$  (Fig. 1 b). Sie lässt sich darstellen als

$$W(\Theta) = \sum_k A_k P_k(\cos \Theta).$$

Die Koeffizienten  $A_k$  sind bei der  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K. abhängig von den Spins der drei Niveaus und von den Multipolordnungen der emittierten  $\gamma$ -Strahlen. Ein Vergleich der gemessenen Verteilungsfunktion mit der Theorie erlaubt daher die Bestimmung dieser für die Diskussion

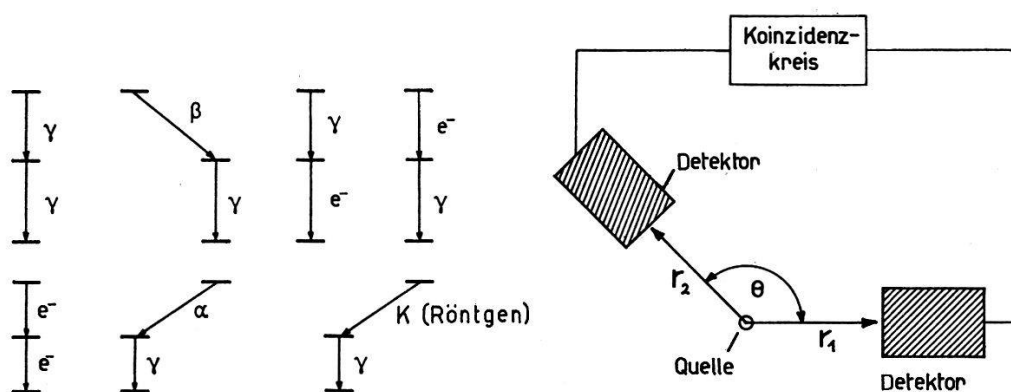


Fig. 1 a.

Einige Möglichkeiten sukzessiver Strahlungen, die mit Hilfe der Richtungskorrelation untersucht werden können.

Fig. 1 b.

Prinzipielle Anordnung zur Messung der Richtungskorrelation sukzessiver Strahlungen  $r_1$  und  $r_2$ .

der Kernmodelle wichtigen Grössen. Sind die auftretenden Strahlungen Mischungen verschiedener Multipolordnungen, so legt eine R.K.-Messung auch das Mischungsverhältnis fest.

Die hier beschriebenen einfachen Verhältnisse setzen voraus, dass der zerfallende Kern freist. Eine Änderung der Orientierung des Kerns im Zwischenniveau beeinflusst sofort auch die Korrelation. HAMILTON<sup>1)</sup>, der 1940 als erster die Theorie der R.K. ausgearbeitet hat, weist bereits auf die Möglichkeit einer solchen Beeinflussung hin. Störeffekte treten auf durch Wechselwirkung der Kernmomente mit elektrischen und magnetischen Feldern. Um eine falsche Interpretation von R.K.-Messungen zu vermeiden, ist die genaue Kenntnis dieser Störeinflüsse erforderlich. Umgekehrt lassen sich bei bekannter Beeinflussung Momente angeregter Kernniveaus bestimmen.

Neben der  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K. lassen sich noch andere Winkelkorrelationen bestimmen (Fig. 1 a). Die vorliegende Arbeit befasst sich zur Hauptsache mit der *Konversionselektronenkorrelation*. Darunter verstehen wir alle jene Korrelationen, bei denen wenigstens von einem Übergang die emittierten Konversionselektronen gezählt werden. Im

speziellen beschränken wir uns auf Fälle, wo der andere Übergang durch  $\gamma$ -Quanten oder auch wieder durch Konversionselektronen stattfindet. Wir sprechen dann abgekürzt von der  $\gamma$ - $e^-$ -,  $e^-$ - $\gamma$ - oder  $e^-e^-$ -R.K. Im weitern muss angegeben werden, aus welcher Schale die beobachteten Elektronen stammen, d. h. wir unterscheiden z. B.  $\gamma$ - $e_{\bar{K}}^-$ -,  $\gamma$ - $e_{L_I}^-$ -,  $\gamma$ - $e_{L_{II}}^-$  usw. Korrelationen.

Trotz der Tatsache, dass die  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K. die wichtigste Korrelation ist, hat daneben auch die Konversionselektronenkorrelation grosse Bedeutung erlangt. Folgende Gründe können dafür angeführt werden:

a) Die Konversionselektronenkorrelation gibt nicht nur Angaben über Spins und Multipolordnungen, sondern auch über die Parität eines Überganges. Sie vermag also — im Gegensatz zur  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K. — magnetische und elektrische Strahlungen zu unterscheiden.

b) In vielen Fällen ist es aus Intensitätsgründen angezeigt, statt der  $\gamma$ - $\gamma$ - die  $e^-$ - $\gamma$ - oder  $\gamma$ - $e^-$ -R.K. heranzuziehen. Vor allem bei Übergängen hoher Multipolordnung und kleiner Energie wird der grossen Konversion wegen eine Messung der Konversionselektronenkorrelation vorteilhaft sein. Im Extremfall ist bei totaler Konversion ein  $\gamma$ - $\gamma$ -Experiment überhaupt ausgeschlossen.

c) Eine unbekannte Störung verunmöglicht die Interpretation von R.K.-Messungen. Die Tatsache, dass die  $\gamma$ - $\gamma$ - und die  $\gamma$ - $e^-$ -Korrelation in gleicher Weise beeinflusst werden, erlaubt jedoch, bei gleichzeitiger Bestimmung dieser beiden Korrelationen die unbekannte Störung zu eliminieren. Damit erhält man — trotz der Störung — Auskunft über Multipolarität und Parität des konvertierten Überganges.

d) Bei komplizierten Zerfällen, z. B. wenn beide Übergänge gemischt sind, kann der Fall eintreten, dass die  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K. allein keine eindeutige Aussage ergibt. Als zusätzliche Messungen werden dann  $\gamma$ - $e^-$ - oder  $e^-$ - $\gamma$ -Experimente sehr wertvoll sein.

Gegenüber der  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K. bieten die Experimente zur Konversionselektronenkorrelation allerdings grosse zusätzliche Schwierigkeiten, vor allem infolge der Streuung der Elektronen. So steht die Bedingung, dass die Quelle dünn sein soll, oft im Widerspruch zur verlangten ungestörten R.K. Gerade flüssige Quellen, die sich am besten zur Messung der ungestörten Korrelation eignen, lassen sich nur sehr schwer in der erforderlichen geringen Dicke herstellen. Im allgemeinen werden die verwendeten Präparate zudem eine flächenhafte Ausdehnung aufweisen, was eine spezielle Korrektur der gemessenen Winkelverteilung notwendig macht. Um die Streuung der Elektronen in der Luft zwischen Quelle und Detektor zu



vermeiden, wird die ganze Apparatur im Vakuum aufgestellt. Dadurch wird die Messanlage, verglichen mit einer  $\gamma$ - $\gamma$ -Apparatur, komplizierter.

Eine prinzipielle Schwierigkeit bietet die  $e^-$ - $\gamma$ -Korrelation. Durch die Konversion im ersten Übergang ist die Elektronenhülle im mittleren Zustand angeregt. Wechselwirkung des Magnetfeldes der Hülle mit dem magnetischen Moment des Kerns kann deshalb bei der  $e^-$ - $\gamma$ - und  $e^-$ - $e^-$ -Korrelation — im Gegensatz zur  $\gamma$ - $\gamma$ - und  $\gamma$ - $e^-$ -R.K. — Anlass zu einer Störung geben.

Das Ziel dieser Arbeit ist,

1. die Methoden der Konversionselektronenkorrelation an einer wohlbekanntem Kaskade ( $\text{Cd}^{111}$ ) zu überprüfen und dabei erstmals alle vier möglichen Korrelationen ( $\gamma$ - $\gamma$ ,  $\gamma$ - $e^-$ ,  $e^-$ - $\gamma$ ,  $e^-$ - $e^-$ ) zu messen;
2. in einem Fall, wo die  $\gamma$ - $\gamma$ -Messung aus Intensitätsgründen unmöglich ist, mit Hilfe der  $e^-$ - $\gamma$ -Korrelation Aussagen über den Zerfall zu erhalten ( $\text{Hg}^{197}$ ); und
3.  $\gamma$ - $e^-$ - und  $e^-$ - $\gamma$ -Messungen an einer Kaskade, an der  $\gamma$ - $\gamma$ -Experimente kein eindeutiges Resultat ergeben, durchzuführen ( $\text{Ta}^{181}$ ).

Im Zusammenhang damit werden die experimentellen Fragen und Probleme, die bei der Messung der Konversionselektronenkorrelation auftauchen, diskutiert. Wir haben insbesondere eine Korrekturformel berechnet, die den Einfluss flächenhaft ausgedehnter Quellen auf die R.K. erfasst.

Als allgemeine Einführung in die Probleme der R.K. eignet sich der Artikel von FRAUENFELDER<sup>2)</sup> im Buch über Kernspektroskopie von SIEGBAHN. Eine Zusammenstellung der ganzen Theorie findet man bei BIEDENHARN und ROSE<sup>3)</sup>.

## 2. Ergebnisse der Theorie.

Die Winkelverteilung einer  $\gamma$ -Strahlung ist nur dann anisotrop, wenn die zerfallenden Kerne polarisiert sind. Das lässt sich bei tiefen Temperaturen mit hohen elektrischen oder magnetischen Feldern erreichen. Zum gleichen Ziel gelangt man, wenn es gelingt, aus einer Menge von räumlich statistisch verteilten Spins solche spezieller Orientierung auszulesen. Dies ist dann möglich, wenn man Koinzidenzen zwischen zwei sukzessiven  $\gamma$ -Strahlen beobachtet: Dadurch, dass man nur solche erste Quanten misst, die in der Richtung des ersten Zählers emittiert werden, liest man Kerne aus, die vor der Emission des zweiten Quantes zu einem bestimmten Grade polarisiert sind. Die zweite Strahlung wird daher relativ zur

ersten eine anisotrope Intensitätsverteilung aufweisen, die im zweiten, beweglichen Detektor gemessen wird.

Die ausführliche Theorie der R.K. ist bei BIEDENHARN und ROSE<sup>3)</sup> und bei ROSE<sup>4)</sup> beschrieben. Wir beschränken uns darauf, hier die Resultate anzuführen.

Der angeregte Kern zerfällt über eine Kaskade von zwei sukzessiven Strahlungen  $r_1$  und  $r_2$ :  $I_1 \xrightarrow{r_1} I \xrightarrow{r_2} I_2$  (siehe Fig. 1). Die Strahlungen  $r_1$  und  $r_2$  sollen entweder  $\gamma$ -Strahlen oder Konversionselektronen ( $e^-$ ) sein.

Die Auswahlregeln  $|I_1 - I| \leq L_1 \leq |I_1 + I|$ , analog für  $L_2$ , beschränken die Multipolaritäten  $L_1$  und  $L_2$  der Strahlungen  $r_1$  und  $r_2$ . Werden dadurch mehrere Multipolordnungen zugelassen, so kommt nach der Theorie der elektromagnetischen Strahlung  $L = L_{\min}$  im allgemeinen mit der grössten Intensität vor. Von den höhern  $L$  weist nur noch  $L' = L_{\min} + 1$  vergleichbare Intensität auf, während alle weitem vernachlässigt werden können. Aus diesem Grund ist es sinnvoll, die Strahlungen  $r$  allgemein als eine Mischung der Multipolaritäten  $L = L_{\min}$  und  $L' = L_{\min} + 1$  anzusetzen.

Das Mischungsverhältnis  $\delta^2$  dieser zwei Multipolordnungen ist definiert als

$$\delta^2 = \frac{\text{Intensität}(r, L')}{\text{Intensität}(r, L)}. \quad (1)$$

$\delta$  selbst kann positive oder negative Werte zwischen Null und Unendlich annehmen.

Die R.K. zweier sukzessiver Strahlungen  $r_1$  und  $r_2$  lässt sich immer darstellen als

$$W(\Theta)_{r_1 r_2} = \sum_k A_k(r_1 r_2) P_k(\cos \Theta). \quad (2)$$

Die auftretenden Koeffizienten  $A_k(r_1 r_2)$  sind Produkte zweier Faktoren  $f_k$ , die je nur von einem Übergang abhängen:

$$A_k(r_1 r_2) = f_k(r_1 I_1 I) f_k(r_2 I_2 I) \quad (3)$$

mit

$$f_k(r_1 I_1 I) = \{b_k(r_1 L_1 L_1) F_k(L_1 L_1 I_1 I) + \delta_1^2 b_k(r_1 L'_1 L'_1) F_k(L'_1 L'_1 I_1 I) + 2 \delta_1 b_k(r_1 L_1 L'_1) F_k(L_1 L'_1 I_1 I)\}. \quad (4)$$

Die analoge Formel gilt für  $f_k(r_2 I_2 I)$ .

Numerische Werte für  $F_k(L_1 L_1 I_1 I)$  und  $F_k(L'_1 L'_1 I_1 I)$  können den Tabellen von BIEDENHARN und ROSE<sup>3)</sup> oder von FERENTZ und ROSENZWEIG<sup>5)</sup> entnommen werden. Die Interferenzterme  $F_k(L_1 L'_1 I_1 I)$  sind ebenfalls hier<sup>5)</sup> tabelliert. Ihr Auftreten in der Gleichung (4)

bewirkt, dass die R.K. sehr empfindlich auf Mischungen verschiedener Multipolaritäten sein kann.

$\delta^2$  ist das in (1) definierte Intensitätsverhältnis. Die Partikelparameter  $b_k$  charakterisieren die Art der betrachteten Strahlung  $r$ .

Für  $k = 0$  gilt  $F_0(L_1 L_1 I_1 I) = b_0(r_1 L_1 L_1) = 1$  und  $F_0(L_1 L_1' I_1 I) = b_0(r_1 L_1 L_1') = 0$ . Die Korrelationsfunktion (2) ist damit so normiert, dass  $\overline{W(\Theta)}_{r_1, r_2} = (1 + \delta_1^2)(1 + \delta_2^2)$ .

Für  $\gamma$ -Strahlen sind die Partikelparameter  $b_k = 1$ . Damit wird  $A_k(\gamma\gamma) = A_k(I_1, I, I_2, \delta_1, \delta_2)$  eine Funktion der Spins  $I_1, I$  und  $I_2$  und der Mischungsverhältnisse  $\delta_1$  und  $\delta_2$  in beiden Übergängen. Die  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K. erlaubt daher die Bestimmung dieser Grössen.

Für *Konversionselektronen* sind die Partikelparameter  $b_k(e^{-LL})$  und  $b_k(e^{-LL'})$  Funktionen der Multipolordnung, der Energie und der Parität des Überganges sowie der Kernladungszahl. Sie hängen ferner davon ab, aus welcher Schale das konvertierte Elektron stammt. Wie wir in der Einleitung bemerkten, erlaubt also die Konversionselektronenkorrelation zusätzlich die Bestimmung der Parität.

Numerische Werte der  $b_k$  für  $K$ -Konversionselektronen sind bei BIEDENHARN und ROSE<sup>3)</sup> tabelliert. Der Interferenzterm  $b_k(e^{-LL'})$  wird dort als  $b(L)$  bezeichnet, wobei die Multipolordnung  $L' = L + 1$  der elektrischen,  $L$  der magnetischen Strahlung zugehört. Das Intensitätsverhältnis  $\delta(e^-)$  kann durch die Konversionskoeffizienten  $\alpha$  auf  $\delta(\gamma)$  zurückgeführt werden:

$$\delta(e^-) = \sqrt{\frac{\alpha(L')}{\alpha(L)}} \delta(\gamma). \quad (5)$$

Die Formeln (2), (3) und (4) erlauben es, in Verbindung mit den angegebenen Tabellenwerken<sup>3) 5)</sup> jede praktisch vorkommende  $\gamma$ - $\gamma$ - oder Konversionselektronenkorrelation zu berechnen. Bei Mischungen in beiden Übergängen gestaltet sich die Ausrechnung allerdings sehr mühsam, da zwei freie Parameter  $\delta_1$  und  $\delta_2$  vorkommen. Die R.K. von Übergängen reiner Multipolarität erhält man als Spezialfall für  $\delta = 0$  sofort aus den gegebenen Formeln.

### 3. Beeinflussung der Richtungskorrelation.

Die im letzten Kapitel zitierten Ergebnisse der Theorie gelten nur unter der Voraussetzung, dass die Korrelation nicht durch extranukleare Felder beeinflusst wird. Derartige Effekte resultieren aus der Wechselwirkung zwischen dem magnetischen Dipolmoment, resp. dem elektrischen Quadrupolmoment des Kerns mit magne-

tischen, resp. elektrischen Feldern der Umgebung. Diese Felder bewirken, im Bilde des Vektormodells beschrieben, eine Präzessionsbewegung der Kernmomente um die Feldachse und damit eine Rotation der Korrelationsfunktion. Massgebend für die dadurch bewirkte Veränderung oder „Störung“ der R.K. ist das Produkt aus der Präzessionsfrequenz und der Zeit, während der die Präzessionsbewegung stattfindet. Die Frequenz ist  $\omega_H \sim \mu H$  im magnetischen und  $\omega_Q \sim eQ \cdot \delta^2 V / \delta z^2$  im elektrischen Fall. Die Zeit, während der die Störung wirkt, ist für die integrale Korrelation (d. h.  $\tau_A \gg \tau_K$ ) von der Grössenordnung  $\tau_K$ . ( $\tau_A$  ist das zeitliche Auflösungsvermögen des Koinzidenzverstärkers,  $\tau_K$  die Lebensdauer des mittleren Niveaus der Kaskade.)

Die Störung der R. K. durch äussere Felder bietet zwei Aspekte: Einerseits gestattet sie, die Kernmomente  $\mu$  und  $Q$  der sehr kurzlebigen mittleren Zustände von  $\gamma$ - $\gamma$ -Kaskaden zu messen<sup>6)7)</sup>. Andererseits aber erschwert sie die Messung der wahren, ungestörten R. K. und damit die Bestimmung von Spins und Mischungsverhältnissen von Multipolordnungen. Mit dieser unerwünschten Störung der R.K. ist zu rechnen, sobald die Lebensdauer des mittleren Zustandes der Kaskade  $\tau_K \geq 10^{-9}$  sec beträgt.

Zur Bestimmung von Kernmomenten kurzlebiger Zustände eignet sich die Konversionselektronenkorrelation nicht. Wir brauchen uns daher nicht mit diesem Gesichtspunkt von Störungen zu beschäftigen. Hingegen stellen sich im Zusammenhang mit unserer Arbeit die folgenden Probleme: a) wie stellt man fest, ob eine R.K. gestört ist oder nicht? b) welche Art von Quellen ergibt die möglichst unbeeinflusste R.K.? und c) wie lassen sich trotz unbekannter Störung auf Grund eines R.K.-Experimentes Aussagen über Spins und Mischungsverhältnisse gewinnen?

Eine eingehende Diskussion dieser Fragen findet man in der Arbeit von ALBERS, HEER und SCHERRER<sup>8)</sup>. Wir beschränken uns hier darauf, drei verschiedene Typen von Störungen zu besprechen, die für unsere Experimente von Bedeutung sind. In allen diesen Fällen lässt sich die gestörte R.K. beschreiben durch

$$W(\Theta) = \sum_k A_k G_k P_k(\cos \Theta) \quad (6)$$

mit den Schwächungsfaktoren  $G_k$ <sup>9)10)11)</sup>. Eine Beeinflussung der R.K. kann immer dann in dieser Weise beschrieben werden, wenn die störenden Felder keine Vorzugsrichtung aufweisen.

In *polykristallinen Quellen* muss man im allgemeinen immer mit einer *stationären Quadrupolwechselwirkung* rechnen. Theoretisch



sollte diese Beeinflussung in kubischen Quellen wegfallen, sofern die aktiven Atome in Gitterplätzen sitzen und die Kristallite genügend gross sind. Es zeigt sich, dass diese Bedingungen experimentell nur sehr schwer zu erfüllen sind und dass in der Regel selbst kubische Quellen nicht die ungestörte R.K. zeigen<sup>8)12)</sup>. Will man trotzdem aus Messungen an polykristallinen Quellen Aufschluss über die ungestörte R.K. erhalten, so führen Delay-Experimente<sup>8)</sup> oder die gleichzeitige Messung der  $\gamma$ - $\gamma$ - und der  $\gamma$ - $e^-$ -Korrelation (siehe Seite 149) zum Ziel.

In *flüssigen Quellen* (wässrige Lösungen, metallische Schmelzen) ist eine *instationäre Quadrupolwechselwirkung* vorhanden<sup>8)9)</sup>. Infolge der Brownschen Bewegung der Flüssigkeitsmoleküle ändern die störenden Felder dauernd Betrag und Richtung. In günstigen Fällen geht die Bewegung so schnell vor sich, dass die Felder im Zeitmittel verschwinden und praktisch die ungestörte R.K. gemessen werden kann. Flüssige Quellen und ganz besonders metallische Schmelzen eignen sich daher am besten zur Messung der unbeeinflussten, „maximalen“ R.K.

Eine besondere Art *instationärer Wechselwirkung mit Feldern der Elektronenhülle* kann auftreten bei der  $e^-$ - $\gamma$ -R.K. und bei Korrelationen, denen ein  $K$ -Einfang vorangeht. In beiden Fällen ist die Hülle angeregt oder jonisiert und erzeugt beim Auffüllen der Schalen am Ort des Kerns zeitlich variable Felder. Die daraus resultierende Beeinflussung der R.K. ist theoretisch noch nicht behandelt worden. Ihre Messung würde interessante Aufschlüsse über die Lebensdauern angeregter Elektronenzustände geben.

#### 4. Apparatur.

Die experimentelle Anordnung, die üblicherweise zur Messung der R.K. sukzessiver Strahlungen  $r_1$  und  $r_2$  dient, ist in Fig. 1 b dargestellt: Mit einem festen und einem beweglichen Detektor und einem Koinzidenzverstärker messen wir die Koinzidenzen  $K(\Theta)$  in Funktion des Winkels  $\Theta$ , den die Detektoren mit der Quelle bilden. Daraus lässt sich die gesuchte Winkelverteilungsfunktion  $W(\Theta)$  bestimmen.

Die Art der verwendeten Detektoren ist durch die Korrelation, die man messen will, gegeben. Zur Messung der  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K. dienen zwei  $\gamma$ -Zähler, während für die Konversionselektronenkorrelation je ein Detektor für die  $\gamma$ -Strahlen und die Elektronen ( $\gamma$ - $e^-$  und  $e^-$ - $\gamma$ ), resp. zwei Elektronendetektoren ( $e^-$ - $e^-$ ) benötigt werden.

WARD und WALKER<sup>13)</sup> und WALTER, HUBER und ZÜNTI<sup>14)</sup> haben als erste  $e^-e^-$ -Experimente unternommen. Sie verwendeten Geiger-Müller-Zählrohre und konnten durch Absorber Elektronen verschiedener Energien grob trennen. Die reine  $e_{\bar{K}}e_{\bar{K}}$ -Korrelation, die bis heute allein berechnet werden kann, wurde von diesen Autoren jedoch nicht gemessen.

Wesentliche Beiträge zur  $\gamma e^-$ - und  $e^- \gamma$ -Korrelation stammen von STEVENSON und DEUTSCH<sup>15)</sup>, MCGOWAN<sup>16)</sup>, GOLDBERG und FRANKEL<sup>17)</sup>, GOLDEN und FRANKEL<sup>18)</sup>, GIMMI, HEER und SCHERRER<sup>19)</sup> und COBURN und FRANKEL<sup>20)</sup>.

Alle diese Experimentatoren benützten zur Registrierung der  $\gamma$ -Strahlen Szintillationszähler, z. T. in Verbindung mit Impulsanalysatoren. Im Zählkanal für die Elektronen unterscheiden sich die verschiedenen Apparaturen jedoch prinzipiell, indem einerseits magnetische Spektrometer mit Zählrohren oder Kristallen, andererseits Szintillations-Impulsspektrometer mit Anthracenkristallen

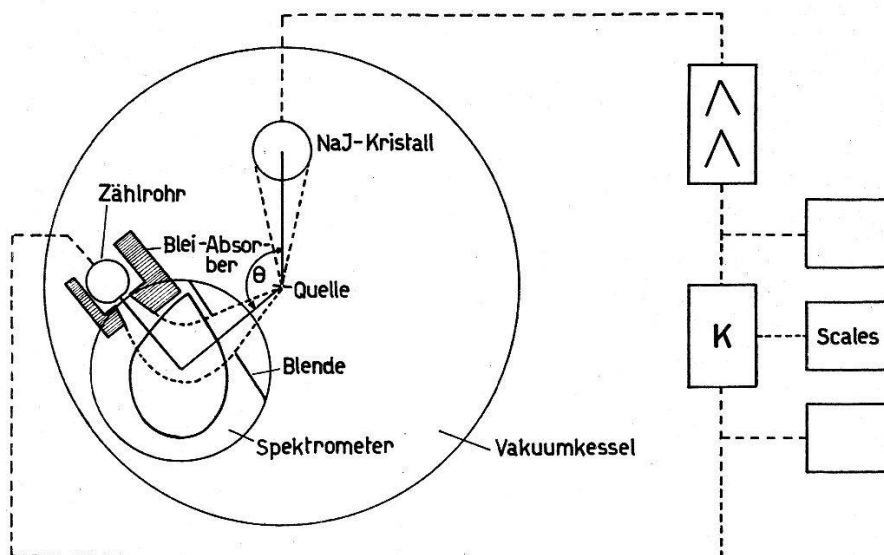


Fig. 2.

Blockschema der Apparatur mit dem magnetischen Spektrometer.

angewendet wurden. Beide Methoden weisen gewisse Vor- und Nachteile auf.

Magnetische Spektrometer ergeben eine sehr gute Energieauflösung und gestatten es überdies, den Elektronenzähler mit Absorbern gegen direkte  $\gamma$ -Strahlen abzuschirmen. Dadurch wird vermieden, dass Spuren einer  $\gamma\text{-}\gamma$ -Korrelation die Messung der Konversionselektronenkorrelation stören.

Die Verwendung eines Szintillationsspektrometers erfordert weniger apparativen Aufwand und ist billiger als ein magnetisches Spektrometer. Dagegen sind dem Energieauflösungsvermögen durch



die Lichtausbeute des Anthracenkristalls Grenzen gesetzt. Für sehr hohe Elektronenenergien kann sodann der Untergrund niederenergetischer  $\gamma$ -Strahlung störend in Erscheinung treten.

Wir haben unsere Experimente mit zwei verschiedenen Apparaturen ausgeführt. Fig. 2 zeigt die Anordnung der ersten Messanlage, mit der sowohl  $\gamma$ - $e^-$ - und  $e^-$ - $\gamma$ - wie auch  $e^-$ - $e^-$ -Korrelationen gemessen werden können.

Ein kleiner, im Vakuum drehbarer Magnet lenkt die Elektronen durch die speziell geformten Polschuhe um  $90^\circ$  ab und fokussiert sie auf das Glimmerfenster eines Geiger-Müller-Zählrohrs. Bei einem Raumwinkel von 1% (in Einheiten  $4\pi$ ) beträgt die Energieauflösung für 200 keV Elektronen ungefähr 10%. Damit ist es in vielen Fällen möglich,  $K$ - und  $L$ -Konversionselektronen zu trennen. Ein Spektrum von  $\text{Cd}^{111}$  ist in Fig. 8 auf Seite 173 aufgezeichnet.

Ein NaJ-Kristall in Verbindung mit einem 1P21-Multiplier registriert die  $\gamma$ -Strahlen. Wenn wir den Kristall durch ein  $\beta$ -Zählrohr ersetzen, können wir mit der gleichen Anlage auch die  $e^-$ - $e^-$ -Korrelation messen. Die Trennung der Elektronenenergien ist dann allerdings nur im Kanal mit dem magnetischen Spektrometer möglich. Bleiabsorber verhindern, dass  $\gamma$ -Strahlen in das Zählrohr des Spektrometers gelangen und einen störenden Anteil der  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K. ergeben. Um die Streuung der Elektronen herabzusetzen, haben wir die ganze Apparatur mit Plexiglas ausgekleidet.

Eine Automatik ändert die Position des Magneten nach wählbaren Intervallen von 15', 30' oder einer Stunde. In den Messpausen registriert eine Filmkamera den Stand der drei Zähler für Einzelstöße und Koinzidenzen sowie den Winkel.

Die beschriebene Apparatur hat sich für Messungen der Konversionselektronenkorrelation einfacher Zerfälle gut bewährt. Bei komplizierteren Zerfallsschemen ergibt sich jedoch die Notwendigkeit, auch die  $\gamma$ -Energien trennen zu können. Zu diesem Zweck haben wir bei der bereits bestehenden  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K.-Apparatur, die in beiden Kanälen Impulsanalysatoren besitzt, den festen Detektor durch einen neu konstruierten  $e^-$ -Zähler ersetzt. In Fig. 3 ist der Aufbau dieser zweiten Apparatur dargestellt. Damit lassen sich die  $\gamma$ - $e^-$ - und  $e^-$ - $\gamma$ -Korrelation messen, während  $e^-$ - $e^-$ -Experimente in der gezeigten Anordnung nicht möglich sind. Hingegen kann ohne Verschiebung der Quelle auch die  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K. gemessen werden, wenn man einen zweiten, festen  $\gamma$ -Detektor senkrecht zum Elektronenzähler aufstellt.

Der bewegliche Detektor gehört zur üblicherweise verwendeten  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K.-Apparatur. Er besteht aus einem NaJ-Kristall der Grösse

1"  $\times$  1" und einer Dumont-Photomultiplerröhre 6292. Die Impulse werden linear verstärkt und in einen Differentialimpulsanalysator geführt. Ein  $\gamma$ -Impulsspektrum von Ta<sup>181</sup> ist in Fig. 13 auf Seite 181 gezeigt.

Als  $e^-$ -Detektor dient ein Anthracenkristall. Er ist mit Kalt-Araldit auf eine Glasplatte aufgeklebt, die den luftdichten Abschluss der evakuierten Aluminiumhaube (Wandstärke 0,3 mm) bildet. Durch diese Konstruktion wird vermieden, dass die Vakuumdichtungen die Multiplerröhre mechanisch beanspruchen. Kanada-balsam oder Siliconfett vermitteln den optischen Kontakt zwischen Glasplatte und Photoröhre. Zur Vermeidung der Streuung der Elektronen ist die Aluminiumhaube innen mit einer dünnen Paraffinschicht ausgestrichen. Messungen mit einem Aluminiumabsorber

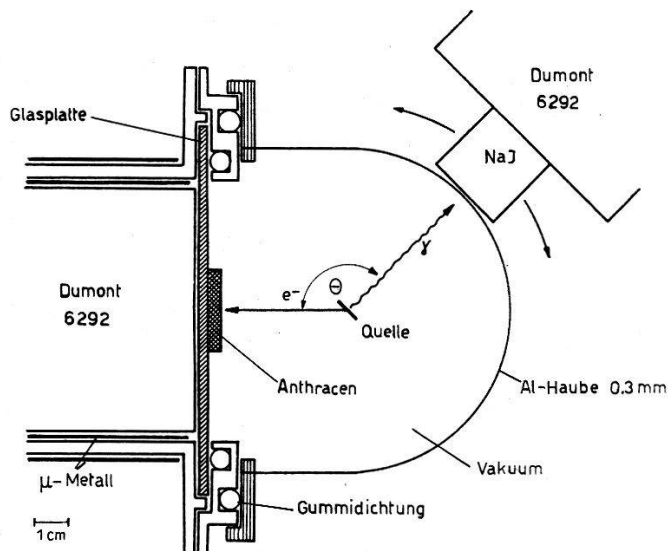


Fig. 3.

Apparatur zur Messung der Konversionselektronenkorrelation mit Impulsspektroskopie in beiden Kanälen.

zwischen Quelle und Anthracenkristall haben gezeigt, dass nur eine vernachlässigbar kleine Zahl gestreuter Elektronen in den Anthracenkristall gelangt. Die Kristalloberfläche ist zur Vermeidung von Lichtverlusten mit einer dünnen Aluminiumfolie ( $3\mu$ ) bedeckt. Damit lässt sich gleichzeitig das Wegdampfen des Anthracens im Vakuum, das ohne diese Vorsichtsmaßnahme im Laufe von Wochen beobachtet wird, verhindern.

Die Kristalldicke wählen wir so, dass die Elektronen der höchsten Energie, die beim betrachteten Zerfall vorkommen, im Kristall gerade noch ganz gestoppt werden. Auf diese Weise halten wir die Empfindlichkeit des Anthracens für  $\gamma$ -Strahlen tief. Das Verhältnis der Reichweiten  $R$  (in cm) von Elektronen in Anthracen und in

Aluminium berechnet sich aus den Elektronendichten zu  $R_{\text{Anthr}} : R_{\text{Al}} \approx 2$ . Mit Hilfe der bekannten Reichweitkurven für Elektronen in Aluminium lässt sich dann die minimale Kristalldicke sofort ermitteln.

Bei Benützung solcher Kristalle gelingt es in allen praktischen Fällen, den Anteil mitgemessener  $\gamma$ -Strahlen im Elektronendetektor vernachlässigbar klein zu halten. Dies rührt z. T. auch davon her, dass im Anthracen fast ausschliesslich Comptoneffekt stattfindet.

Dünne Anthracenkristalle stellten wir nach folgendem Verfahren her: Von den in unserm Institut gezüchteten grossen Kristallen schneidet man mit einer feinen Kristallsäge Scheiben von ca. 3 mm Dicke weg. Sie werden auf einer Seite mit feinem Schmirgelpapier plangeschliffen und nachher poliert. Die so behandelte Seite des Kristalls kleben wir mit Kalt-Araldit auf die Glasplatte der Messkammer. Mit einem speziell geschliffenen Stahl lässt sich dann das Anthracen auf der Drehbank auf die gewünschte Dicke bearbeiten und an der Oberfläche polieren. Wir haben auf diese Weise Kristalle bis zu Dicken von 0,4 mm hergestellt.

Für Anthracen ist das beste zu erwartende Energieauflösungsvermögen (bei idealer Optik)<sup>21)</sup>

$$F = \sqrt{\frac{0,36 \eta_s}{\eta E (\eta_s - 1)}}. \quad (7)$$

$E$  = Elektronenenergie in keV.

$\eta$  = Primärelektronenausbeute der Multipliekathode.

$\eta_s$  = Sekundärelektronenausbeute der Dynoden.

Mit mittleren Werten  $\eta = 0,09$  und  $\eta_s = 3,5$  erhalten wir z. B. bei 400 keV Energie  $F = 12\%$ .

Nicht ideale Optik und Multipliereinflüsse verschlechtern in unserer Apparatur das Auflösungsvermögen bei der gleichen Energie auf eine Grösse von  $F \approx 15\%$ . Ein  $e^-$ -Spektrum von  $\text{Hf}^{181}$ — $\text{Ta}^{181}$  ist in Fig. 13 auf Seite 181 aufgezeichnet.

Die Änderung des Messwinkels erfolgt auch bei dieser Apparatur automatisch nach wählbaren Intervallen von 5', 15', 30' und 60'. Besonders bei Messungen kleiner Anisotropien wird der Winkel alle 5' gewechselt, um Beeinflussungen des Resultats durch apparative Schwankungen möglichst zu eliminieren. Zur Registrierung stehen für Einzelstösse und Koinzidenzen je 40 mechanische Zähler zur Verfügung.

### 5. Messmethode.

Das Ziel einer R.-K.-Messung ist, die Koeffizienten  $A_k$  der Winkelverteilungsfunktion  $W(\Theta)$  zu bestimmen. Ein Mass für  $W(\Theta)$  sind die in Funktion des Winkels  $\Theta$  gemessenen Koinzidenzen  $K(\Theta)$ . Bei der  $\gamma$ - $e^-$ -Korrelation gilt z. B.

$$K(\Theta) = N \frac{\alpha_{2K}}{(1 + \alpha_1)(1 + \alpha_2)} \varepsilon_\gamma \varepsilon_{e^-} \Omega_\gamma \Omega_{e^-} W(\Theta) + K_{\text{zuf}} \quad (8)$$

$\varepsilon$  : Empfindlichkeiten der Detektoren.

$\Omega$  : Raumwinkel.

$\alpha_1, \alpha_2$  : Totale Konversionskoeffizienten beider Übergänge.

$\alpha_{2K}$  : K-Konversionskoeffizient des zweiten Überganges.

$N$  : Zerfälle pro sec.

Quellenstärke und zeitliches Auflösungsvermögen des Koinzidenzverstärkers bestimmen die Zahl der zufälligen Koinzidenzen:

$$K_{\text{zuf}} = 2 \tau_A Z_\gamma Z_{e^-} \sim \tau_A N^2. \quad (9)$$

Sie lassen sich auf zwei Arten messen: 1. Nach Gleichung (9) kann durch getrennte Aufstellung der Detektoren mit zwei verschiedenen Quellen direkt das Auflösungsvermögen  $\tau_A$  bestimmt werden. 2. Man verzögert während eines normalen Koinzidenzexperimentes die Impulse in einem Kanal um eine Zeit  $\tau_V > \tau_A$  und  $\tau_V \gg \tau_K$ . Dadurch verschwinden alle wahren Koinzidenzen. Diese Methode erlaubt es, die zufälligen Koinzidenzen im Laufe einer R.-K.-Messung automatisch zu registrieren, indem jeweils nach einer bestimmten Anzahl Messintervalle ein Verzögerungskabel in einen Kanal eingeschaltet wird.

Die Grösse  $K(\Theta) - K_{\text{zuf}}$  ist nun proportional zu  $W(\Theta)$ . Den Nachteil, dass sich dieser Ausdruck mit der Quellenstärke  $N$  zeitlich ändert, kann man durch die Bildung einer Koinzidenzrate ( $KR$ ) beheben:

$$KR = \frac{K(\Theta) - K_{\text{zuf}}}{Z_{\text{bew}}} = \text{const. } W(\Theta). \quad (10)$$

Wir wählen als Bezugsgrösse die Einzelstosszahl im beweglichen Detektor, weil damit der Einfluss mangelhafter Zentrierung der Quelle eliminiert wird. Wenn der bewegliche Kanal nur gerade die koinzidenzfähige Strahlung registriert, ist die nach (10) gebildete Koinzidenzrate auch unempfindlich gegen Schwankungen der Ansprechwahrscheinlichkeit und des Spektrums im beweglichen Zähler. Für Quellen sehr langer Halbwertszeit bleibt  $N$  über die Dauer eines Messintervalles praktisch konstant. Es erweist sich dann als vorteilhaft, die Koinzidenzrate

$$KR = \frac{K(\Theta) - K_{\text{zuf}}}{Z_{\text{bew}} Z_{\text{fest}}} = \frac{\text{const.}}{N} W(\Theta) \quad (11)$$

zu bilden, da dann unter Umständen Schwankungen in beiden Kanälen wegfallen. Zudem gestaltet sich die Berücksichtigung der zufälligen Koinzidenzen bei der Auswertung einfacher.

Das weitere Vorgehen bei der Auswertung sei an einem Beispiel gezeigt. Wir wollen die Koeffizienten  $A_2$  und  $A_4$  der Korrelation  $W(\Theta) = 1 + A_2 P_2(\cos \Theta) + A_4 P_4(\cos \Theta)$  bestimmen. Zu diesem Zweck messen wir die Koinzidenzraten für drei Winkel, z. B.  $KR(90^\circ)$ ,  $KR(135^\circ)$  und  $KR(180^\circ)$ . Mit den Hilfsgrößen

$$A = \frac{KR(180^\circ) - KR(90^\circ)}{KR(90^\circ)}, \quad U = \frac{KR(135^\circ) - KR(90^\circ)}{KR(90^\circ)} \quad (12)$$

findet man

$$\bar{A}_2 = \frac{10(5A + 4U)}{7A + 56U + 105}, \quad \bar{A}_4 = \frac{48(A - 2U)}{7A + 56U + 105}. \quad (13)$$

Um aus  $\bar{A}_2$  und  $\bar{A}_4$  die gesuchten Koeffizienten  $A_2$  und  $A_4$  zu erhalten, müssen wir noch verschiedene Korrekturen anwenden. Wir werden diese Korrekturen im nächsten Kapitel besprechen und betrachten vorher noch die Fehler, mit denen  $\bar{A}_2$  und  $\bar{A}_4$  behaftet sind.

Der statistische Fehler setzt sich folgendermassen zusammen:

$$\frac{\Delta KR}{KR} \approx \frac{\Delta K_{\text{wahr}}}{K_{\text{wahr}}} = \frac{\Delta(K_{\text{tot}} - K_{\text{zuf}})}{K_{\text{wahr}}} \approx \frac{\sqrt{K_{\text{tot}}}}{K_{\text{wahr}}}. \quad (14)$$

Für die Hilfsgrößen  $A$  und  $U$  vernachlässigen wir den relativen Fehler des Nenners gegenüber dem viel grösseren des Zählers und finden

$$\Delta A \approx \Delta U \approx \frac{\sqrt{2K_{\text{tot}}}}{K_{\text{wahr}}}, \quad (15)$$

wo  $K_{\text{tot}}$  resp.  $K_{\text{wahr}}$  einen Mittelwert der bei *einem* Winkel gemessenen Koinzidenzen bedeuten. Damit erhalten  $\bar{A}_2$  und  $\bar{A}_4$  die folgenden relativen Fehler:

$$\begin{aligned} \frac{\Delta \bar{A}_2}{\bar{A}_2} & \left( \frac{\sqrt{82}}{5A + 4U} + \frac{7 \cdot \sqrt{130}}{7A + 56U + 105} \right) \frac{\sqrt{K_{\text{tot}}}}{K_{\text{wahr}}} \\ \frac{\Delta \bar{A}_4}{\bar{A}_4} & \left( \frac{\sqrt{10}}{A - 2U} + \frac{7 \cdot \sqrt{130}}{7A + 56U + 105} \right) \frac{\sqrt{K_{\text{tot}}}}{K_{\text{wahr}}}. \end{aligned} \quad (16)$$

Neben den statistischen Fehlern treten bei einer R.-K.-Messung noch verschiedene systematische Fehler auf. Die nie ideale Zentrierung der Quelle, kleine, unvermeidbare Schwankungen der Messwinkel, Ungenauigkeiten der anzuwendenden Korrekturen und Schwankungen der elektronischen Apparatur sind Einflüsse, die sich



nicht genau erfassen lassen. Eine Abschätzung all dieser Effekte zeigt, dass auch bei der sorgfältigsten Durchführung eines Experimentes der von den apparativen Unsicherheiten herrührende Fehler nicht vernachlässigt werden kann. Wir haben daher bei unseren Messungen immer beide Fehleranteile berücksichtigt.

### 6. Korrekturen.

Bei einem idealen R.-K.-Experiment sendet eine punktförmige Quelle Strahlen oder Partikeln aus, die ohne irgendwelche Richtungsablenkung (durch Streuung) in die ebenfalls punktförmigen Detektoren gelangen. Es sind vor allem Intensitätsgründe, die ein solches Idealexperiment nicht erlauben. Die dadurch bewirkte „Verschmierung“ der Korrelationsfunktion kompensieren wir im Falle der Konversionselektronenkorrelation durch Korrekturen für

- a) endliche Grösse der Detektoren,
- b) flächenhafte Ausdehnung der Quelle und
- c) Streuung der Elektronen in der Quelle.

Wir beschreiben im folgenden die Methoden, nach welchen wir die durch diese Abweichungen vom Idealfall bedingten Korrekturen berechnet und angewandt haben. Die drei zu korrigierenden Effekte sind in der benützten Näherung voneinander unabhängig. Das bedeutet, dass man die drei entsprechenden Korrekturen einzeln nacheinander anwendet, um aus den Resultaten der Auswertung  $\bar{A}_k$  (siehe Seite 160) schliesslich die gesuchten  $A_k$  zu erhalten. Die numerischen Angaben mögen erstens einen Einblick in die Grössenordnung der zu erwartenden Korrekturen geben und sollen ferner in konkreten Fällen die explizite Berechnung erleichtern.

#### a) Endliche Ausdehnung der Detektoren.

Wir benützen im wesentlichen die bei LAWSON und FRAUENFELDER<sup>22)</sup> beschriebene Korrekturmethode. Sowohl  $\gamma$ - wie  $e^-$ -Detektor sollen kreisförmig sein; die punktförmige Quelle befinde sich im Drehzentrum des beweglichen Zählers. Die endliche Grösse der Detektoren hat zur Folge, dass eine theoretische Korrelationsfunktion  $W(\Theta) = \sum A_k P_k(\cos \Theta)$  übergeht in die „verschmierte“ Winkelverteilung  $\bar{W}(\Theta) = \sum A_k S_k^I S_k^{II} P_k(\cos \Theta)$ . Die Korrektur für endliche Detektorausdehnung wird also:

$$A_k^{\text{korr}} = \frac{A_k^{\text{unkorr}}}{S_k^I \cdot S_k^{II}} \quad (17)$$

mit

$$S_k^I = \frac{\int \epsilon^I(\alpha) P_k(\cos \alpha) \sin \alpha \cdot d\alpha}{\int \epsilon^I(\alpha) \sin \alpha \cdot d\alpha}. \quad (18)$$



$S_k^{\text{II}}$  für den Detektor II berechnet sich analog.  $\varepsilon(\alpha)$  ist die Empfindlichkeit des Detektors für die unter dem Winkel  $\alpha$  einfallende Strahlung. Für den  $\gamma$ -Detektor I misst man  $\varepsilon(\alpha)$  mit einem wohldefinierten  $\gamma$ -Strahlenbündel (siehe z. B. LAWSON und FRAUENFELDER<sup>22</sup>) und wertet damit die Integrale in (18) graphisch aus. Für Elektronen lassen sich die Korrekturfaktoren  $S_k^{\text{II}}$  numerisch ausrechnen, indem die Empfindlichkeit  $\varepsilon^{\text{II}}(\alpha) = 1$  eingesetzt wird. Aus Fig. 4 können die Werte  $S_2^{\text{II}}$  und  $S_4^{\text{II}}$  für den über die Oberfläche gleichmässig empfindlichen Elektronendetektor II entnommen werden.

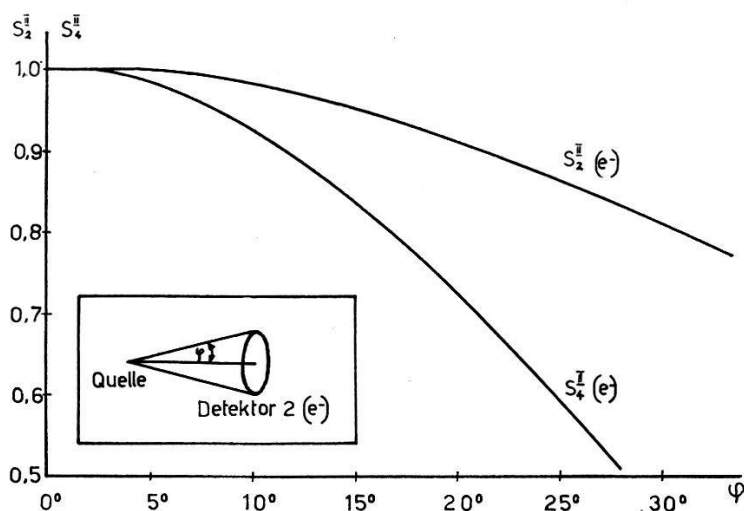


Fig. 4.

Raumwinkelkorrekturfaktoren  $S_2^{\text{II}}$  und  $S_4^{\text{II}}$  für den Zähler II konstanter Empfindlichkeit ( $e^-$ -Zähler).

*Beispiel:* Die Quelle befindet sich im Abstand 35 mm vom  $1'' \times 1''$  NaJ-Kristall. Für eine  $\gamma$ -Energie von 135 keV ergibt die Ausmessung  $S_2^{\text{I}} = 0,931$ ,  $S_4^{\text{I}} = 0,792$ . Der  $e^-$ -Detektor im Abstand von 35 mm von der Quelle hat einen Durchmesser von 22 mm. Nach Fig. 4 folgt dann  $S_2^{\text{II}} = 0,93$ ,  $S_4^{\text{II}} = 0,78$ . Damit erhalten wir  $A_2^{\text{korrr}} = 1,15 A_2^{\text{unkorr}}$  und  $A_4^{\text{korrr}} = 1,61 A_4^{\text{unkorr}}$ . Der Einfluss des endlichen Raumwinkels auf die Korrelation ist also ziemlich gross. Da er sich jedoch mit guter Genauigkeit berechnen lässt, ist es aus Intensitätsgründen nicht angezeigt, kleinere Raumwinkel zu wählen.

Bei der Apparatur mit dem magnetischen Spektrometer haben weder der  $\gamma$ - noch der  $e^-$ -Detektor kreisförmige Eintrittsblenden. Die notwendigen Korrekturen wurden in diesem Fall nach einer verallgemeinerten Korrekturformel von WALTER, Huber und ZÜNTI<sup>14</sup>) für rechteckige Detektoren berechnet.

b) *Flächenhafte Ausdehnung der Quelle.*

Bis heute existiert keine Arbeit, die den Einfluss einer beliebig räumlich ausgedehnten Quelle auf die R.K. explizit berechnet. Da eine solche Rechnung nicht nur von Form und Lage der Quelle, sondern auch von den benützten Meßstellungen abhängt, wird sie im allgemeinen sehr kompliziert. Andererseits kann bei den weitaus am häufigsten ausgeführten  $\gamma$ - $\gamma$ -Experimenten fast immer der Idealfall der punktförmigen Quelle realisiert werden. Einige prinzipielle Betrachtungen zu diesem Korrekturproblem finden sich bei FEINGOLD und FRANKEL<sup>23)</sup>, LAWSON und FRAUENFELDER<sup>22)</sup> und BREITENBERGER<sup>24) 25)</sup>.

Quellen für die Konversionselektronenkorrelation haben flächenhafte Ausdehnung. Eine allgemeine Korrekturformel wird wie bei räumlicher Ausdehnung sehr kompliziert und lässt sich nicht unabhängig von der Raumwinkelkorrektur für die Detektoren behandeln. Bei WALTER, HUBER und ZÜNTI<sup>14)</sup> ist für eine spezielle Messanordnung gerechnet, wie die Koinzidenzrate  $K/Z_{\text{bewegl.}}$  durch eine rechteckige Quelle in bestimmter Stellung beeinflusst wird.

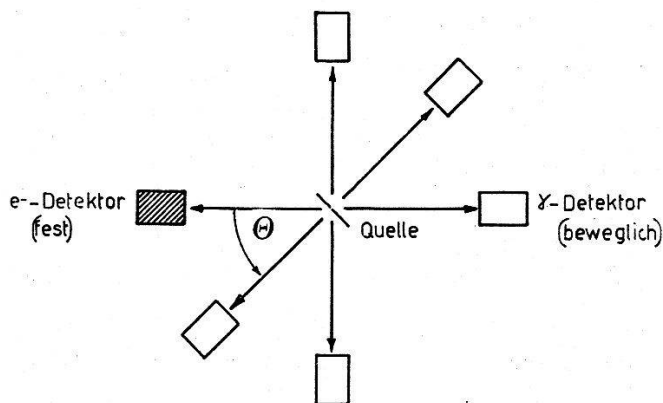


Fig. 5.

Quellenanordnung und Detektorenstellungen für die Korrektur flächenhafter Quellenausdehnung.

Die Rechnungen sind für eine Verteilung der Form  $W(\Theta) = 1 + A \cos^2 \Theta$  durchgeführt und erlauben in einfachen Fällen, explizite Korrekturen auszurechnen\*).

In Verallgemeinerung der Formeln von WALTER haben wir die durch flächenhafte Quellen bedingten Korrekturen berechnet für  $W(\Theta) = 1 + A_2 P_2(\cos \Theta) + A_4 P_4(\cos \Theta)$ . Die gewählte Stellung der Quelle und die Winkel, bei denen Koinzidenzen gemessen werden, berücksichtigen die bei praktischen Anwendungen gebräuchlichsten

\*) In den Korrekturformeln von WALTER, HUBER und ZÜNTI sind zwei Druckfehler enthalten, die unter Umständen falsche Ergebnisse liefern können.

**Tabelle I.**

Korrekturen für flächenhafte Quellenausdehnung.

Die Messwinkel sind für die vier Fälle:

(a)  $180^\circ, 225^\circ, 270^\circ$ ; (b)  $180^\circ, 225^\circ, 90^\circ$ ; (c)  $180^\circ, 45^\circ, 270^\circ$ ; (d)  $180^\circ, 45^\circ, 90^\circ$   
 $u = h/R, v = b/R, h = \text{Höhe}, b = \text{Breite der Quelle}, R = \text{Abstand Quelle-Detektor}.$ 

$A_2^{\text{korr}} = \frac{0,22 v^2 + A_2^{\text{unkorr}} (1 - 0,90 u^2 - 1,64 v^2) + A_4^{\text{unkorr}} (0,84 u^2 - 0,47 v^2)}{1 - 1,25 u^2 - 1,90 v^2 + A_2^{\text{unkorr}} (0,19 u^2 - 0,23 v^2) + A_4^{\text{unkorr}} (0,18 u^2 - 0,36 v^2)}$	(a)
$A_4^{\text{korr}} = \frac{A_2^{\text{unkorr}} (-0,05 u^2 + 0,45 v^2) + A_4^{\text{unkorr}} (1 - 0,60 u^2 - 0,02 v^2)}{1 - 1,25 u^2 - 1,90 v^2 + A_2^{\text{unkorr}} (0,19 u^2 - 0,23 v^2) + A_4^{\text{unkorr}} (0,18 u^2 - 0,36 v^2)}$	
$A_2^{\text{korr}} = \frac{-0,06 v^2 + A_2^{\text{unkorr}} (1 - 0,90 u^2 - 1,55 v^2) + A_4^{\text{unkorr}} (0,84 u^2 - 0,04 v^2)}{1 - 1,25 u^2 - 1,60 v^2 + A_2^{\text{unkorr}} (0,19 u^2 - 0,20 v^2) + A_4^{\text{unkorr}} (0,18 u^2 - 0,56 v^2)}$	(b)
$A_4^{\text{korr}} = \frac{0,15 v^2 + A_2^{\text{unkorr}} (-0,05 u^2 + 0,49 v^2) + A_4^{\text{unkorr}} (1 - 0,60 u^2 - 0,08 v^2)}{1 - 1,25 u^2 - 1,60 v^2 + A_2^{\text{unkorr}} (0,19 u^2 - 0,20 v^2) + A_4^{\text{unkorr}} (0,18 u^2 - 0,56 v^2)}$	
$A_2^{\text{korr}} = \frac{0,22 v^2 + A_2^{\text{unkorr}} (1 - 1,03 u^2 - 0,57 v^2) + A_4^{\text{unkorr}} (0,79 u^2 - 0,02 v^2)}{1 - 1,25 u^2 - 0,96 v^2 + A_2^{\text{unkorr}} (0,01 u^2 - 0,04 v^2) + A_4^{\text{unkorr}} (0,10 u^2 + 0,27 v^2)}$	(c)
$A_4^{\text{korr}} = \frac{A_2^{\text{unkorr}} (0,28 u^2 + 0,12 v^2) + A_4^{\text{unkorr}} (1 - 0,47 u^2 - 0,16 v^2)}{1 - 1,25 u^2 - 0,96 v^2 + A_2^{\text{unkorr}} (0,01 u^2 - 0,04 v^2) + A_4^{\text{unkorr}} (0,10 u^2 + 0,27 v^2)}$	
$A_2^{\text{korr}} = \frac{-0,06 v^2 + A_2^{\text{unkorr}} (1 - 1,03 u^2 - 0,47 v^2) + A_4^{\text{unkorr}} (0,79 u^2 + 0,41 v^2)}{1 - 1,25 u^2 - 0,66 v^2 + A_2^{\text{unkorr}} (0,01 u^2 - 0,01 v^2) + A_4^{\text{unkorr}} (0,10 u^2 + 0,07 v^2)}$	(d)
$A_4^{\text{korr}} = \frac{0,15 v^2 + A_2^{\text{unkorr}} (0,28 u^2 + 0,16 v^2) + A_4^{\text{unkorr}} (1 - 0,47 u^2 - 0,22 v^2)}{1 - 1,25 u^2 - 0,66 v^2 + A_2^{\text{unkorr}} (0,01 u^2 - 0,01 v^2) + A_4^{\text{unkorr}} (0,10 u^2 + 0,07 v^2)}$	

Fälle. Die Korrekturen vernachlässigen alle Glieder höherer Ordnung als  $u^2 = h^2/R^2$  und  $v^2 = b^2/R^2$  ( $h, b$ , Höhe und Breite der rechteckigen Quelle,  $R = \text{Abstand Quelle Detektor}$ ). Bis zu dieser Ordnung sind die Raumwinkel- und die Quellenausdehnungskorrekturen voneinander unabhängig, so dass die getrennte Anwendung der beiden gerechtfertigt ist. Fig. 5 zeigt die unsern Rechnungen zugrunde gelegte experimentelle Anordnung. Die Quelle sei unter  $45^\circ$  gegen den festen Elektronendetektor befestigt. Für den  $\gamma$ -Detektor sind die Stellungen  $\Theta = 90^\circ$  (resp.  $270^\circ$ ),  $\Theta = 180^\circ$  und  $\Theta = 45^\circ$  (resp.  $225^\circ$ ) gewählt, während die Positionen  $135^\circ$  und  $315^\circ$  ungünstig sind, da dort die Quellenebene direkt auf den Zähler zeigt. Es bestehen nun folgende Messmöglichkeiten: (a)  $\Theta = (180^\circ, 225^\circ, 270^\circ)$ , (b)  $\Theta = (180^\circ, 225^\circ, 90^\circ)$ , (c)  $\Theta = (180^\circ, 45^\circ, 270^\circ)$  und (d)  $\Theta = (180^\circ, 45^\circ, 90^\circ)$ . Tabelle I gibt die Korrekturen für die Fälle (a) bis (d).

### *Diskussion der Korrekturformeln.*

1. Anwendung: Man befestigt die Quelle nach Fig. 5 und wählt die drei Messwinkel entsprechend einer der vier Möglichkeiten (a) bis (d). Zur Auswertung muss die Koinzidenzrate  $K/Z_{\text{bew}}$  oder  $K/Z_{\text{bew}} Z_{\text{fest}}$  benützt werden, da in den Formeln die Änderung der Stosszahlen  $Z_{\text{bew}}$  mit dem Winkel berücksichtigt ist. Die Zentrierung der Quelle soll durch Vergleichen der Stosszahlen  $Z_{\text{bew}}$  bei  $90^\circ$ ,  $180^\circ$  und  $270^\circ$  erfolgen, da die Breite der Quelle die Einzelstösse nur bei diesen drei Winkeln gleich beeinflusst.

2. Aus den Gleichungen (a) bis (d) folgt, dass flächenhafte Quellen auch bei isotropen Winkelverteilungen eine Anisotropie zeigen. In den Fällen (a) und (c) verschwindet dieser Effekt für den Term  $A_4^{\text{korrr}}$ . Zur Bestimmung eines relativ kleinen Koeffizienten  $A_4$  ist es daher angezeigt, eine der Varianten (a) oder (c) zu benützen. Da dieser anisotrope Geometrieeffekt nur von der Breite der Quelle herrührt, wird man die Quelle mit Vorteil in der Höhe ausgedehnter als in der Breite wählen.

3. Die Grössenordnung dieser Korrekturen soll an einem Beispiel erläutert werden. Wir wählen eine rechteckige Quelle mit  $b = 5$  mm und  $h = 8$  mm. Sie sei in einem Abstand  $R = 35$  mm von den Detektoren befestigt. Aus den gemessenen Koinzidenzraten bei  $180^\circ$ ,  $225^\circ$  und  $270^\circ$  (Fall (a)) ergebe sich  $A_2^{\text{unkorr}} = 0,200$ ,  $A_4^{\text{unkorr}} = -0,050$ . Mit den Korrekturen von Tabelle I wird dann  $A_2^{\text{korrr}} = 0,208$ ,  $A_4^{\text{korrr}} = -0,0525$ . Die relativen Korrekturen halten sich bei Koeffizienten  $A_k$  von der Grössenordnung 10% in tragbarem Rahmen, werden jedoch für kleine Messgrössen rasch bedeutender. Tabelle I gibt im umgekehrten Sinn auch Auskunft darüber, welche Quellengrösse in einem speziellen Fall gewählt werden soll. Zum Schluss sei noch bemerkt, dass man für runde Quellen vom Radius  $r$  genügend genaue Korrekturen erhält, wenn man die Formeln (a) bis (d) für eine quadratische Quelle mit  $h = b = r \cdot \sqrt[4]{8}$  benützt.

#### c) *Streuung der Elektronen in der Quelle.*

Die von einer radioaktiven Quelle emittierten Konversionselektronen erfahren durch Streuung in der Quelle und im Medium zwischen Quelle und Detektor Ablenkungen von ihrer ursprünglichen Bahn, die um so beträchtlicher werden, je kleiner die Elektronenenergie und je schwerer das durchlaufene Material ist. Die Streuung in der Luft lässt sich durch Evakuierung des Raumes zwischen Präparat und Zähler eliminieren. Hingegen kann die Streuung in der Quelle selbst in vielen Fällen nicht vermieden werden, so dass auch dafür Korrekturen nötig sind.

WALTER, HUBER und ZÜNFTI<sup>14)</sup> berücksichtigen die Streuung der Elektronen so, dass sie die mittlere Winkelablenkung des gestreuten Teilchens bestimmen und die Raumwinkelkorrektur für entsprechend vergrösserte Detektoren anwenden. Für die mittlere Winkelablenkung geben sie ein Nomogramm, dessen Werte für Vielfachstreuung gelten, unter der Annahme, dass alle Elektronen die gleiche Schichtdicke durchlaufen. In bestimmten Fällen lässt sich an Hand des Nomogramms grössenordnungsmässig beurteilen, welche Störung der R.K. durch die Streuung in der Quelle zu erwarten ist.

FRANKEL<sup>26)27)</sup> hat gezeigt, dass sich die Streukorrektur durch einen Faktor  $c_k$  beschreiben lässt. Eine Winkelverteilung  $W(\Theta) = \Sigma A_k P_k(\cos \Theta)$  geht unter Berücksichtigung der Streuung in der Quelle über in  $\bar{W}(\Theta) = \Sigma c_k A_k P_k(\cos \Theta)$ . Die Streukorrektur wird also

$$A_k^{\text{korr}} = \frac{A_k^{\text{unkorr}}}{c_k}. \quad (19)$$

Die Streufaktoren  $c_k$  lassen sich explizit berechnen. FRANKEL benützt dazu die Arbeiten von GOUDSMIT und SOUNDERSON<sup>28)29)</sup> über Vielfachstreuung und erhält

$$\bar{c}_k = e^{-a_k t}. \quad (20)$$

$\bar{c}_k$  ist der Streufaktor, wenn alle Elektronen eine Schicht gleicher Dicke  $t$  durchlaufen. Für eine homogen aktive Quelle wird

$$c_k = \frac{1 - e^{-a_k t}}{a_k t}. \quad (21)$$

$t$  ist die Quellendicke in  $\text{mg}/\text{cm}^2$ . Für  $a_k$  gilt nach FRANKEL

$$a_k = 0,302 \cdot 10^{-3} \frac{Z^2(1+\kappa)^2}{M(2\kappa+\kappa^2)^2} k(k+1) \left( \ln \frac{150(2\kappa+\kappa^2)^{1/2}}{Z^{1/3}} - \sum_2^k 1/k \right) \quad (22)$$

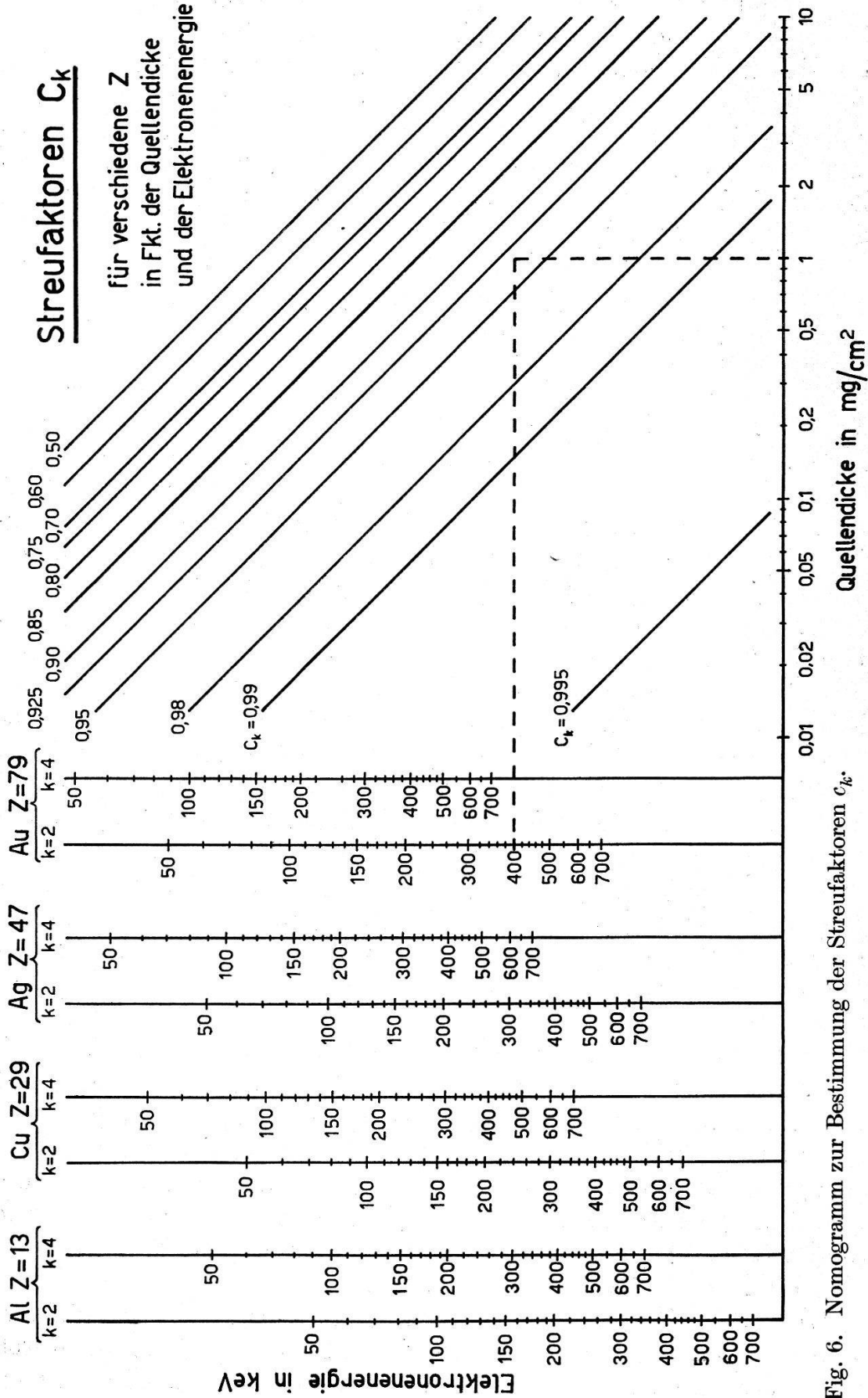
$Z$  = Kernladungszahl.

$M$  = Molekulargewicht des streuenden Materials.

$\kappa$  = Elektronenenergie in Einheiten  $m_0 c^2$ .

In den Korrekturen, die sich nach (19), (21) und (22) berechnen lassen, stecken Annahmen über die Streuung, die nur den Charakter einer Näherung haben. GOLDEN und FRANKEL<sup>18)</sup> haben jedoch gezeigt, dass die damit erhaltenen Resultate trotzdem gut stimmen. Sie haben zu diesem Zweck die Korrelationsverschmierung unter Veränderung der Quellendicke gemessen und bis zu sehr grossen Dicken überraschend gute Übereinstimmung mit den errechneten Korrekturen gefunden.





\* Fig. 6. Nomogramm zur Bestimmung der Streufaktoren  $C_k$ .



Wir haben aus diesem Grunde unsere Streukorrekturen nach FRANKELS Methode berechnet. Um für bestimmte Fälle rasch einen Überblick über die zu erwartenden Streufaktoren zu erhalten, geben wir in Fig. 6 für verschiedene Quellenmaterialien die Streufaktoren  $c_k$  für  $k = 2$  und  $k = 4$ , in Funktion der Quellendicke und der Elektronenenergie. Als Beispiel ergibt sich für Elektronen von 400 keV-Energie bei einer Quellendicke von  $1 \text{ mg/cm}^2$  Gold ein  $c_2 = 0,93$ , d. h.  $A_2^{\text{korr}} = 1,07 \cdot A_2^{\text{unkorr}}$ .

## 7. Quellenherstellung.

Die Quellenherstellung ist für die Konversionselektronenkorrelation eines der wichtigsten experimentellen Probleme. Wir werden bei der Beschreibung unserer Experimente im Detail darauf eingehen. Hier seien lediglich einige allgemeine Betrachtungen angeführt.

Elektronenquellen müssen auf einer geeigneten *dünnen Trägerfolie* deponiert sein. Wir verwendeten dazu in den meisten Fällen *Formvarfolien*. In eine Lösung von Formvar in Transdichloräthylen (z. B. 1 g in  $200 \text{ cm}^3$  Lösungsmittel) taucht man eine geschliffene Glasplatte. Auf der Oberfläche bildet sich nach dem Verdunsten des Lösungsmittels eine dünne Formvarhaut, deren Dicke von der Konzentration der Lösung und von der Geschwindigkeit, mit der man die Glasplatte aus der Lösung zieht, abhängt. An den Rändern der Platte löst man mit einem Tuch die Schicht sorgfältig ab und kann dann in Wasser leicht die ganze Haut ablösen. Die auf dem Wasser schwimmende Folie wird schliesslich mit einem Racket aus dünnem Draht, das später die Quellenhalterung darstellt, aufgefangen. Auf solche Weise lassen sich Folien mit Dicken von einigen bis zu einigen hundert Mikrogramm pro  $\text{cm}^2$  und Flächen bis zu  $100 \text{ cm}^2$  ohne weiteres herstellen. Der grosse Vorteil der Formvarhäute ist ihre grosse mechanische Festigkeit und die sehr einfache Herstellungsart. Damit sich die Quelle nicht elektrisch auflädt, machen wir die Trägerschicht leitend durch Bedampfen mit Aluminium. Das Aufdampfen erfolgt am besten, solange die Formvarhaut noch auf der Glasplatte klebt. Das dicke Glas nimmt dann den grössten Teil der auftreffenden Wärme auf und verhindert die Zerstörung der Formvarhaut durch die Hitze. Die kleine thermische Widerstandsfähigkeit wie auch die Unbeständigkeit gegen Säuren sind die Nachteile von Formvarfolien.

Wenn diese Gründe die Verwendung von Formvar nicht zulassen, werden mit Erfolg *Aluminiumoxydfolien* benützt, welche sich durch grosse thermische und chemische Widerstandsfähigkeit auszeichnen.

Sie lassen sich aus Reinst-Aluminium durch anodische Oxydation gewinnen. Die genaue Herstellungsmethode ist bei STROHMAIER<sup>30)</sup> beschrieben.

Um die radioaktive Quelle auf dünne Träger zu deponieren, haben wir prinzipiell drei Möglichkeiten: a) Aufdampfen der Aktivität, b) Elektrolyse, c) Eintrocknenlassen eines Tropfens mit gelöster Aktivität. Die letztgenannte Methode hat den Nachteil, dass die Aktivität sehr unregelmässig über die nicht genau definierte Fläche der Quelle verteilt ist. Wir haben daher solche Präparate nur in wenigen speziellen Fällen hergestellt.

Die Elektrolyse eignet sich prinzipiell sehr gut zur Herstellung dünner Quellen. Die technische Ausführung bietet allerdings grosse Schwierigkeiten, da die als Träger verwendeten Blattmetallfolien (ca. 200  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) von der Grösse einiger  $\text{mm}^2$  sehr schwer zu handhaben sind. Wir haben deshalb auch nur wenige Quellen durch Elektrolyse gewonnen.

Bei der Aufdampfmethodemethode wird die Aktivität allein oder auch zusammen mit einem stabilen Material (Doppelstrahlmethode) aus Schiffchen von Kohle, Aluminiumoxyd (Degussit), Molybdän, Tantal usw. verdampft. Als Auffänger dient entweder eine der beschriebenen Trägerfolien direkt oder ein Metallspiegel, der vorher auf die Trägerfolie aufgedampft wurde. Die Form der Quelle wird durch eine Blende bestimmt, die unmittelbar vor der Folie in den Strahl eingeführt wird. Oft ist es wichtig, den Auffänger beim Verdampfen auf einer bestimmten Temperatur zu halten. Silber z. B. wird auf eine heisse Unterlage aufgedampft, wenn man grosse Kristallite erhalten will. Umgekehrt muss der Auffänger beim Verdampfen eines schlecht haftenden Materials sehr kalt sein, da der Haftkoeffizient (= haftendes Material/verdampftes Material) mit kleineren Temperaturen ansteigt. In solchen Fällen benützen wir als Auffänger nicht mehr die dünne Trägerfolie, sondern die polierte Oberfläche eines Kochsalzkristalls. Dieser lässt sich entweder auf einen Ofen montieren und heizen oder mit flüssiger Luft kühlen. In Wasser kann man nachher die Quelle leicht vom Kristall ablösen und mit einer Trägerfolie auffischen.

## 8. Experimente an $\text{Cd}^{111}$ .

### A. Einleitung.

Es war unser Ziel, an der Kaskade des  $\text{Cd}^{111}$  (Fig. 7) erstmals alle vier möglichen Korrelationen ( $\gamma$ - $\gamma$ ,  $\gamma$ - $e_K^-$ ,  $e_K^-$ - $\gamma$ ,  $e_K^-$ - $e_K^-$ ) zu messen und mit der Theorie von BIEDENHARN und ROSE<sup>3)</sup> zu vergleichen, die bei Beginn dieser Experimente noch durch keine Messung be-

stätigt worden war. Gleichzeitig wollten wir die experimentellen Methoden der Konversionselektronenkorrelation entwickeln und prüfen.

Die Kaskade des  $\text{Cd}^{111}$  eignet sich zu diesem Zweck besonders gut, weil erstens das Zerfallsschema auf Grund eingehender Experimente verschiedener Autoren<sup>6)7)8)12)31)</sup> als absolut gesichert angesehen werden kann, und weil zweitens die Grösse der  $K$ -Konversionskoeffizienten die Messung aller Korrelationen mit befriedigender Intensität gestattet. Die Lebensdauer des Zwischenniveaus ( $1,23 \cdot 10^{-7}$  sec) lässt eine Beeinflussung der Korrelation erwarten. Man

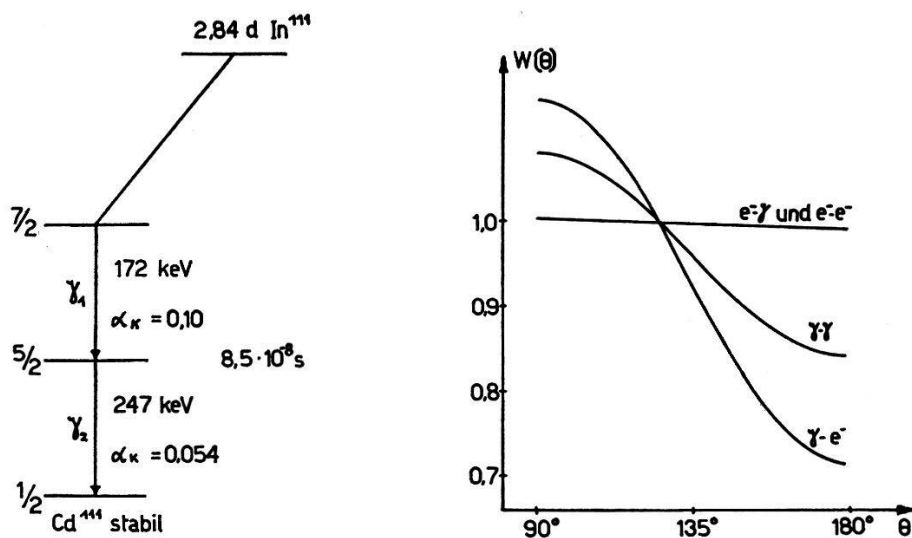


Fig. 7.

Zerfallsschema des  $\text{In}^{111}$  und theoretisch zu erwartende Korrelationsfunktionen  $W(\Phi)$ .

beobachtet denn auch bei den meisten Quellen eine Schwächung der  $\gamma\text{-}\gamma$ -Korrelation. Wir haben uns daher weiter zum Ziele gesetzt, Schwächungsverhältnisse bei  $\gamma\text{-}\gamma$ - und  $\gamma\text{-}e^-$ -R.K. zu vergleichen und insbesondere eine Quelle zu finden, die die Messung der ungestörten Konversionselektronenkorrelation gestattet.

Die Resultate bisheriger Untersuchungen der  $\gamma\text{-}\gamma$ -R.K. können folgendermassen zusammengefasst werden: Die ungestörte, maximale Korrelation ist von der Form  $W(\theta) = 1 + A_2 P_2(\cos \theta)$  mit  $A_2 = -0,17$ . Aus diesem Wert folgt, dass der erste Übergang der Kaskade eine Mischung ist von  $E 2$  und  $M 1$  mit einem Intensitätsverhältnis  $\delta^2 = 0,017$ . Nur sehr wenige Typen von Quellen ergeben diese ungestörte R.K. In den meisten Fällen tritt eine Schwächung auf durch Wechselwirkung des elektrischen Kernquadrupolmoments mit den inhomogenen elektrischen Feldern der Umgebung<sup>32)</sup>. Diese Wechselwirkung verschwindet, wenn das elektrische Feld kubisch

symmetrisch ist. Quellen, bei denen die aktiven Atome in kubische Kristalle, z. B. Silber, eingebaut sind, ergeben deshalb die ungestörte R.K., sofern die Kristallite genügend gross und sauber sind und das aktive Atom an einem Gitterplatz sitzt. Solche Quellen können jedoch nur sehr schwer reproduzierbar hergestellt werden. Die Messung der ungestörten Korrelation erfolgt daher mit Vorteil an flüssigen Quellen, d. h. an metallischen Schmelzen (In, Ga, metallisch) oder an wässrigen Lösungen (z. B.  $\text{InCl}_3$  in  $\text{H}_2\text{O}$ )<sup>8</sup>.

### B. Quellenherstellung.

Unser erstes Ziel war, eine für die Konversionselektronenkorrelation geeignete Quelle herzustellen, welche die ungestörte Korrelationsfunktion ergibt. Insbesondere muss die Quelle dünn sein ( $\approx 400 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ), eine kleine Fläche belegen ( $\approx 40 \text{ mm}^2$ ) und vakuumfest sein. Die Untersuchungen der  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K. haben ergeben, dass zur Messung der ungestörten R.K. zwei Gruppen von Präparaten in Frage kommen: kubische kristalline Quellen und Flüssigkeiten.

Zur ersten Gruppe gehören die Silber-„Doppelstrahlpräparate“. Diese werden wie folgt hergestellt: Das im Zyklotron mit 6 MeV-Protonen bestrahlte Cd wird in feinen Spänen von der Target abgekratzt und in ein Kohleschiffchen eingefüllt. Durch fraktionierte Destillation lässt sich das stabile Cd verdampfen, während die Aktivität In im Schiffchen zurückbleibt. Nachher wird im Hochvakuum das In verdampft und gleichzeitig damit auch das stabile Quellenmaterial Ag aus einem Molybdänschiffchen. Als Auffänger dient ein NaCl-Kristall, der durch einen Ofen beim Aufdampfen auf eine Temperatur von ca.  $200^\circ \text{C}$  geheizt wird. Im Wasser löst man die dünne Quelle vom Kristall ab und befestigt sie für die Messung auf einem formvarbespannten Drahträhmchen. Leider ergaben solche, in der erforderlichen geringen Dicke hergestellte Silber-Doppelstrahlpräparate nie die ungestörte R.K., wie diese bei dicken Präparaten erreicht wird. Bei diesen dünnen Schichten scheinen die Kristallite so klein zu sein, dass infolge von Oberflächeneffekten die elektrischen Felder nicht mehr kubisch symmetrisch sind.

Die Zahl der Lösungsmittel, welche zur Herstellung von Flüssigkeitspräparaten in Frage kommen, wird dadurch stark eingeschränkt, dass die Quellen vakuumfest sein müssen. Schwefelsäure, Glycerin, Butyläther und Pelargonsäure, in denen sich In-Salze lösen lassen, erfüllen diese Bedingung und wurden zu Versuchen herangezogen. Alle diese Flüssigkeiten sind jedoch so zähe, dass die Brownsche Bewegung die elektrischen Felder nicht genügend rasch



ausmitteln kann. Diese Quellen zeigten daher alle eine starke Beeinflussung der R.K.

Die Lösung des Problems wurde schliesslich in der Form einer flüssigen, metallischen Galliumquelle gefunden. Gallium schmilzt bei 30° C und lässt sich ohne Schwierigkeiten auf Zimmertemperatur unterkühlen. Die Galliumquelle wird wie folgt hergestellt: Das aktive In<sup>111</sup> trennt man chemisch vom Targetmaterial Cd. Zu diesem Zweck lösen wir die von der Target abgekratzten Späne in HNO<sub>3</sub> und geben etwa 10 µg Gallium zu. Mit NH<sub>3</sub> werden dann In(OH)<sub>3</sub> und Ga(OH)<sub>3</sub> ausgefällt, während das Cd in Lösung bleibt. Der Niederschlag wird wegcentrifugiert und wieder in HNO<sub>3</sub> gelöst. Wir wiederholen das Verfahren drei- bis viermal und lösen am Schluss In(OH)<sub>3</sub> und Ga(OH)<sub>3</sub> in Ameisensäure. Aus dieser Lösung elektrolysiert man das Indium auf ein dünnes Kohlestäbchen. Der aktive Teil des Stäbchens wird zusammen mit einer abgewogenen Menge stabilen Galliums in ein Schiffchen aus Degussit gebracht, das sich mittels einer Wolframspirale heizen lässt. Durch Verdampfen im Hochvakuum erhält man auf einer Trägerfolie eine dünne, flüssige Galliumschicht, in der die aktiven In<sup>111</sup>-Atome eingebettet sind. Die Dicke der Präparate variiert je nach der verdampften Menge Gallium zwischen 50 und 300 µg/cm<sup>2</sup>. Als Träger wurden Formvarfilme, Glimmerfolien und Aluminiumoxydschichten benutzt.

Die Formvarfilme waren während der Bedampfung zum Schutz gegen Verbrennung auf einer Glasplatte aufgespannt und wurden nachher abgelöst. Leider zeigten solche Gallium-Formvar-Präparate nicht die ungestörte R.K. Es scheint, dass beim Aufdampfen die Formvarhaut durch die Hitze beschädigt wird. Das aufgedampfte Metall mischt sich dabei mit dem Formvar und bildet keine eigentliche Flüssigkeitsschicht mehr.

Die Aluminiumoxydschichten eignen sich ihrer grossen thermischen Widerstandsfähigkeit wegen viel besser. Es ist möglich, das Gallium direkt auf den freien, dünnen Träger aufzudampfen. Diese Präparate zeigten meistens die ungestörte R.K.; in wenigen Fällen wiesen sie eine kleine, eventuell von Verunreinigungen herrührende Schwächung auf.

Präparate mit Glimmerfolien als Träger ergaben alle die ungestörte R.K. Glimmer hat nur den Nachteil, dass es einige Mühe kostet, genügend dünne Folien herzustellen. Nicht nur die Dicke der aktiven Schicht, sondern auch die Dicke der Trägerfolie ist wegen der Rückstreuung einer Begrenzung unterworfen. Immerhin lassen sich mit einiger Übung kleine, farbige Glimmerstücke von etwa 400 µg/cm<sup>2</sup> herstellen.

Die Struktur der Galliumschichten wurde mit dem Elektronenmikroskop und mit Elektronenbeugung untersucht. Es zeigt sich, dass sich die Schichten aus vielen, fein verteilten Flüssigkeitströpfchen zusammensetzen.

### C. Resultate.

Wir haben die auf die beschriebene Art hergestellten dünnen, flüssigen Quellen immer zuerst in der  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K.-Apparatur ausgemessen, um festzustellen, ob die Korrelation wirklich ungestört sei. Der Mittelwert aller dieser Messungen ist  $A_2(\gamma\gamma) = -0,165 \pm 0,004$ . Er liegt etwas unter dem vorher angegebenen, von andern Autoren stammenden Wert  $-0,170$ . Ob dies eine kleine Schwächung bei unsern Quellen oder eine systematische Abweichung der beiden

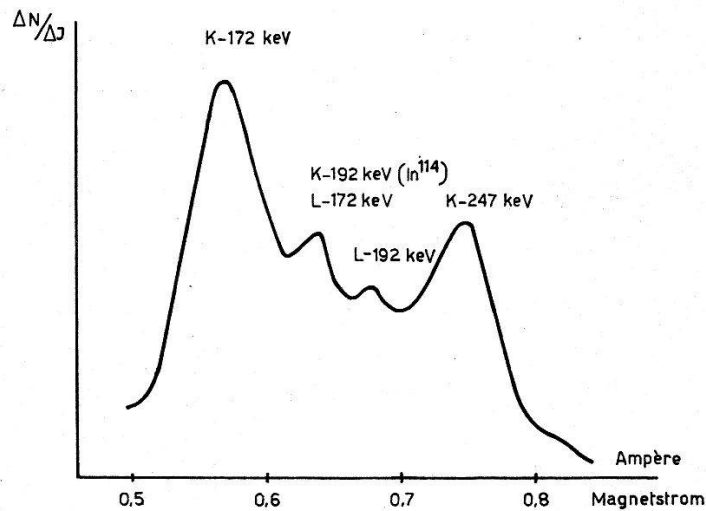


Fig. 8.

Konversionselektronenspektrum des  $\text{Cd}^{111}$ , aufgenommen mit dem magnetischen Spektrometer.

Messungen bedeutet, bleibe dahingestellt. Wir schreiben im folgenden unsern Mittelwert  $-0,165$  der ungestörten  $\gamma$ - $\gamma$ -Korrelation zu und erhalten dazu ein Mischungsverhältnis  $\delta_1^2 = 0,016$ . Die Theorie von BIEDENHARN und ROSE<sup>3)</sup> liefert zu diesem Mischungsverhältnis für die Konversionselektronenkorrelationen:

$$A_2(\gamma e_{\bar{K}}) = -0,296, \quad A_2(e_{\bar{K}} \gamma) = -0,006, \quad A_2(e_{\bar{K}} e_{\bar{K}}) = -0,011.$$

$e_{\bar{K}}\gamma$ - und  $e_{\bar{K}}e_{\bar{K}}$ -Korrelation sind praktisch isotrop, was durch unsere Messungen in der Apparatur mit dem magnetischen Spektrometer sehr gut bestätigt wurde. (Ein Spektrum ist in Fig. 8 aufgezeichnet.) Die Messresultate für die  $\gamma e_{\bar{K}}$ -Korrelation sind aus Fig. 9 ersichtlich. Die angegebenen Fehler enthalten nicht nur die statistischen Feh-



ler, sondern auch die durch nicht ideale Messbedingungen verursachten Schwankungen.

Wir sehen aus Fig. 9, dass die gemessene Korrelation wesentlich vom verwendeten Quellenträger abhängt. Dieser Effekt lässt sich durch die Rückstreuung der Elektronen erklären. Diese kann im Gegensatz zur Streuung in der Quelle selbst bis heute nicht berechnet werden. Wir sind der Schwierigkeit durch Verwendung immer dünnerer Quellenträger ausgewichen. Dabei stellt sich heraus, dass für Glimmerdicken von  $\sim 0,4 \text{ mg/cm}^2$  die theoretisch erwartete  $\gamma$ - $e^-$ -Korrelation gemessen wird. Bei Verwendung der noch

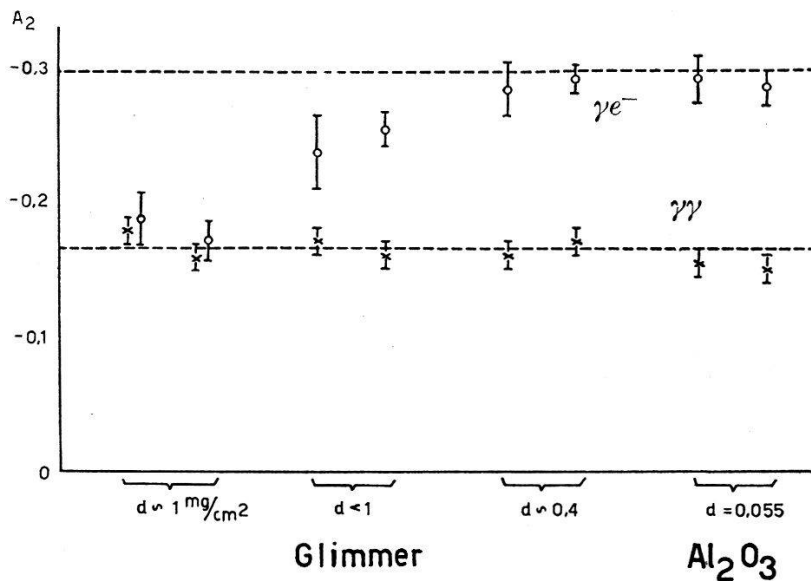


Fig. 9.

Vergleich der Koeffizienten  $A_2(\gamma e^-)$  und  $A_2(\gamma\gamma)$  mit der Theorie.

dünnenen  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Folien steigen die Messwerte  $A_2(\gamma e^-)$  nicht mehr weiter an, sondern bleiben bei den nach der Theorie erwarteten Werten. Unsere Messungen zeigen also einerseits gute Übereinstimmung der  $\gamma$ - $e^-$ -Korrelation mit der Theorie, während sie andererseits eine Abschätzung der durch Rückstreuung verursachten Korrelationsverschmierung ermöglichen.

Im Laufe unserer Experimente haben wir eine Anzahl gestörter Quellen gemessen und an diesen sowohl die  $\gamma$ - $\gamma$ - wie die  $\gamma$ - $e^-$ -R.K. bestimmt. Die nach Gleichung (6), Seite 153, berechneten Schwächungsfaktoren  $G_2(\gamma\gamma)$  und  $G_2(\gamma e^-)$  sind in der Fig. 10 zusammengestellt. In der gewählten Darstellung liegen alle Punkte auf der  $45^\circ$ -Geraden, d. h. die Schwächungsfaktoren sind für beide Korrelationen dieselben. Da die Störung während der Zeit, da sich der Kern im mittleren Niveau aufhält, stattfindet, und da bis zu diesem Moment die beiden Korrelationen sich nicht unterscheiden, entspricht dieses Resultat ganz den Erwartungen. Wie wir schon früher

erwähnt haben, macht es die Bestätigung dieser wichtigen Tatsache möglich, auch bei unbekannter Schwächung durch Messung von  $\gamma$ - $\gamma$ - und  $\gamma$ - $e^-$ -Korrelation an der gleichen Quelle Aufschluss über die Natur des konvertierten Überganges zu erhalten.

Ob bei der  $e^-$ - $\gamma$ - und der  $e^-$ - $e^-$ -Korrelation eine zusätzliche magnetische Schwächung auftritt, ist aus unsern Messungen infolge der Isotropie dieser Verteilungen nicht ersichtlich.

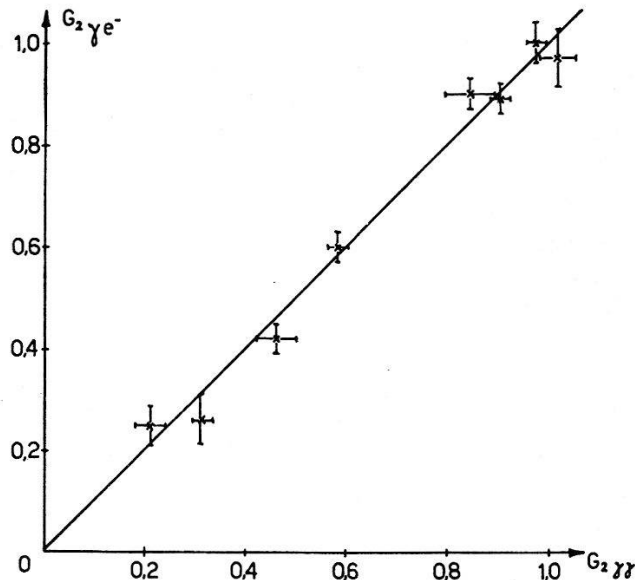


Fig. 10.

Vergleich der Schwächungsfaktoren  $G_2(\gamma\gamma)$  und  $G_2(\gamma e^-)$  für verschiedene gestörte Quellen.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass es im Falle des  $\text{Cd}^{111}$  zum ersten Male gelungen ist, alle vier Korrelationen einer  $\gamma$ - $\gamma$ -Kaskade zu messen und Übereinstimmung aller Resultate zu finden. Die spezielle Art einer flüssigen Galliumquelle, die zu diesem Zweck entwickelt wurde, wird sich auch in andern Fällen nützlich erweisen.

## 9. Experimente an $\text{Hg}^{179}$ .

### A. Einleitung.

Die Quecksilber-Isotope  $\text{Hg}^{193}$ ,  $\text{Hg}^{195}$ ,  $\text{Hg}^{197}$ ,  $\text{Hg}^{199}$  und  $\text{Hg}^{201}$  sind schon von verschiedenen Autoren systematisch untersucht worden<sup>33) 34) 35) 36)</sup>. Wir interessieren uns vor allem für die in Fig. 11 gezeigte Kaskade des  $\text{Hg}^{197}$ . Ähnliche  $\gamma$ - $\gamma$ -Kaskaden weisen auch die Zerfälle der Isotope 193, 195 und 199 auf. Dabei fällt auf, dass  $\text{Hg}^{193}$  und  $\text{Hg}^{195}$  im Grundzustand den Spin  $3/2$  aufweisen, während  $\text{Hg}^{197}$  und  $\text{Hg}^{199}$  den Spin  $1/2$  zugeordnet erhalten. Das Isotop  $\text{Hg}^{201}$  soll nach BERGSTROEM, HILL und DE PASQUALI<sup>34)</sup> einen

$p_{3/2}$ -Grundzustand besitzen. Das Schalenmodell lässt sowohl die Spinwerte  $1/2$  wie  $3/2$  zu.

Im Falle des  $\text{Hg}^{197}$  ist der  $p_{1/2}$ -Grundzustand auf Grund von Messungen der Konversionskoeffizienten postuliert worden. Da diese Messungen für den zweiten Übergang einen  $E 2$  anzeigen, eine kleine Beimischung von  $M 1$  jedoch keineswegs ausschliessen, schien es uns angezeigt, den Spin des Grundzustandes bei  $\text{Hg}^{197}$  mit Hilfe der R.K. neu zu bestimmen.

Die Kaskade des  $\text{Hg}^{197}$  ist ein Schulbeispiel für die Anwendung der Konversionselektronenkorrelation, da der erste Übergang infolge hoher Multipolarität und kleiner Energie praktisch vollkommen konvertiert ist. Ein Versuch, den vorhandenen kleinen Anteil

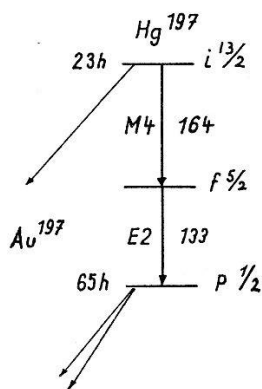


Fig. 11.

Die Kaskade des  $\text{Hg}^{197}$ .

der  $\gamma$ - $\gamma$ -Korrelation zu messen, ist gänzlich aussichtslos, da im Folgekern  $\text{Au}^{197}$  eine  $\gamma$ - $\gamma$ -Kaskade  $130 \text{ keV} - 277 \text{ keV}$  existiert, die mit vergleichbarer Intensität immer störend in Erscheinung tritt.

WALTER, HUBER und ZÜNTI<sup>14)</sup> haben als erste bei  $\text{Hg}^{197}$  die  $e_L^- - e_L^-$ -Korrelation gemessen. Sie finden eine Winkelverteilung der Form  $W(\Theta) = 1 + A_2 P_2(\cos \Theta)$  mit  $A_2 = 0,15 \pm 0,02$ . Ein Vergleich mit der Theorie ist für  $L$ -Konversionselektronen nicht möglich.

Unser erstes Ziel war, in der Apparatur mit dem magnetischen Spektrometer die Abhängigkeit der  $e_L^- - e_L^-$ -Korrelation von der Struktur der Quelle zu untersuchen, um zu zeigen, ob die Korrelation eine elektrische Beeinflussung erleidet oder nicht (verschiedene Feldgradienten in diversen Quellenmaterialien). Nach Abklärung dieser Frage sollte die  $e_K^- - \gamma$ -Korrelation, gemessen in der Apparatur mit den Impulsanalysatoren, die Frage nach dem Spin des Grundzustandes und den Multipolordnungen der beiden Übergänge entscheiden.

### B. Quellenherstellung.

Die Aktivität wird im Zyklotron durch Bestrahlung einer Goldtarget mit  $6 \text{ MeV}$ -Protonen erzeugt ( $\text{Au}^{197}(\text{pn})\text{Hg}^{197}$ ). Von der Oberfläche der bestrahlten Goldtarget kratzen wir feine Späne ab, die wir in ein Pyrex-Glasrohr einfüllen. An eine verengte Stelle des Glasrohrs bringen wir eine Metallfolie von Grösse und Form der gewünschten Quelle, die von einem Stück Filterpapier gehalten wird. Wir haben Ag- und Au-Folien der Dicken  $0,4 \text{ mg/cm}^2$  und  $0,3 \text{ mg/cm}^2$  verwendet. Wir evakuieren das Glasrohr und ver-

schliessen es mit einem Gummistopfen. Dann erhitzen wir die Goldspäne mit einer kleinen Gasflamme während ca. 30 Minuten und kühlen die Stelle, an der die Metallfolie sitzt. Das aktive Hg dampft dabei aus dem Gold weg, schlägt sich jedoch sofort unter Bildung eines Amalgams auf der kalten Metallfolie nieder. Die Ausbeute an Aktivität ist bei diesem Verfahren sehr gross, da das Quecksilber praktisch nur auf dem Metall, nicht aber auf den auch kalten Glaswänden in der Nähe der Folie oder auf dem Filterpapier haftet. Ein Vorteil gegenüber dem normalen Aufdampfverfahren besteht auch darin, dass ein aktives Atom, das beim ersten Auftreffen auf den Präparatsträger nicht haftet, nicht von der Vakuumpumpe abgesaugt wird, sondern nach einigen Reflexionen an den Glaswänden doch noch auf die Metallfolie gelangt.

Um die Streuung in der Quelle möglichst klein zu halten, haben wir statt der Blattmetallfolien auch Formvarfilme verwendet, auf die ein Goldspiegel in der gewünschten Quellengrösse von der Dicke  $\sim 0,05 \text{ mg/cm}^2$  aufgedampft war. Kontrollen zeigten, dass auch bei diesem Verfahren die gesamte Aktivität sich auf dem Goldspiegel niederschlägt, während an der Trägerfolie aus Formvar keine Aktivität festgestellt werden kann.

Schwieriger wird diese Methode mit nichtmetallischen Quellenträgern, da dort das Hg gleich schlecht haftet wie an den Glaswänden. Wir haben zur Beseitigung dieser Schwierigkeiten eine spezielle Aufdampfanordnung konstruiert, mit deren Hilfe sich der Quellenträger während des Aufdampfens auf die Temperatur von flüssiger Luft kühlen lässt. Auf diese Weise sind Hg<sup>197</sup>-Quellen auf SiO- und dünne Glimmerfolien hergestellt worden, jedoch mit viel kleinerer Ausbeute an Aktivität als bei Metallquellen. Das Quecksilber haftet so schlecht auf SiO und Glimmer, dass solche Quellen mit zwei Formvarhäuten bedeckt werden müssen, da sonst die Aktivität während der Messung im Vakuum wieder wegdampft.

Neben diesen in einem Glasrohr aufgedampften Quellen haben wir auch Doppelstrahlpräparate benützt. Ihre Herstellung geht im Prinzip genau gleich vor sich wie beim Cd<sup>111</sup>, indem aus zwei Kohleschiffchen gleichzeitig aktives Hg und stabiles Ag oder Au verdampft wird.

### C. Resultate.

#### a) $e_L^-e_L^-$ -Korrelation.

Die Messresultate sind in Tabelle II zusammengestellt. Man sieht daraus, dass die verschiedenen Quellenstrukturen innerhalb der Fehlergrenzen keine Änderung der Korrelation bewirken. Die R. K. der Kaskade des Hg<sup>197</sup> wird also nicht durch eine stationäre elek-

trische Wechselwirkung beeinflusst. Dieses Resultat lässt sich, verglichen mit dem Zerfall des  $\text{Cd}^{111}$ , gut verstehen. Wenn wir für beide Kerne Quadrupolmomente gleicher Grössenordnung annehmen, so wird die elektrische Wechselwirkung im Falle des Quecksilbers um einen Faktor 10 kleiner als bei Cadmium, da die Lebensdauern der Zwischenniveaus sich um diesen Faktor unterscheiden. Dadurch fällt auch die Möglichkeit, dass es sich bei den Messresultaten um die konstante Minimalkorrelation handelt, ausser Betracht.

Tabelle II.

$A_2$ -Koeffizienten der  $e_L^-e_L^-$ -Korrelation von  $\text{Hg}^{197}$ .

Art der Quelle	$A_2$
Au-Folie . . . . .	$0,15 \pm 0,02$
Ag-Folie . . . . .	$0,13 \pm 0,02$
Glimmer-Folie . . . . .	$0,13 \pm 0,03$
SiO-Folie . . . . .	$0,12 \pm 0,02$
Ag-Doppelstrahl . . . . .	$0,13 \pm 0,03$
Au-Doppelstrahl*) . . . . .	$0,15 \pm 0,02$
*) alte Messung von WALTER, HUBER und ZÜNTELI <sup>14</sup> ).	

b)  $e_K^-$ - $\gamma$ -Korrelation.

In Fig. 11 ist das bisher gültige Zerfallsschema der Kaskade von  $\text{Hg}^{197}$  dargestellt. Messungen der  $K$ -Konversionskoeffizienten und der  $K/L$ -Verhältnisse<sup>33</sup>) ordnen dem 133 keV-Übergang einen  $E 2$  zu, schliessen jedoch eine Beimischung von maximal 1%  $M 1$  nicht aus.

In letzter Zeit sind viele Fälle bekannt geworden, bei denen ein  $E 2$ -Übergang viel schneller ist, als nach dem Einteilchenmodell zu erwarten wäre. Aus diesem Grunde ist eine Mischung von  $E 2$  mit 1%  $M 1$  nicht zum vorneherein ausgeschlossen. Als Folge dieser Mischung muss dann dem Grundzustand der Spin  $3/2$  zugeordnet werden.

BOLOTIN und WILKINSON<sup>37</sup>) haben an der analogen Kaskade des  $\text{Hg}^{199}$   $\gamma$ - $\gamma$ -R.-K.-Messungen gemacht. Ihre Resultate lassen sich nur durch die Annahme einer (unwahrscheinlich grossen) Beimischung von  $E 5$  zu  $M 4$  im ersten Übergang erklären. Obwohl die Genauigkeit dieses Experiments nicht sehr gut ist, wollen wir es berücksichtigen, indem wir auch in unserm Fall eine Mischung von  $E 5$  und  $M 4$  in Betracht ziehen. Nach den Formeln von WEISSKOPF ist ein  $E 5$  für den betrachteten Übergang um einen Faktor  $10^3$  unwahrscheinlicher als ein  $M 4$ . Auch FRANKEL findet (nach einer privaten Mitteilung) mit Messungen der Konversionskoeffi-



zienten einen reinen  $M4$  mit höchstens einer kleinen Beimischung von  $E5$ . Wir beschränken uns deshalb bei der Diskussion auf kleine Beimischungen, d. h.  $\delta_1^2 \leq 0,01$ .

Unsere  $e_K^- \gamma$ -Messungen sollen nun also zwischen den folgenden zwei Möglichkeiten entscheiden können:

$$\begin{aligned} \text{(a)} \quad & 13/2 \xrightarrow[\delta_1]{M4+E5} 5/2 \xrightarrow{E2} 1/2, \quad \delta_1^2 \leq 0,01 \\ \text{(b)} \quad & 13/2 \xrightarrow[\delta_1]{M4+E5} 5/2 \xrightarrow[\delta_2]{M1+E2} 3/2 \quad \delta_1^2 \leq 0,01 \\ & \delta_2^2 \geq 100 \end{aligned}$$

Die Resultate der  $e_L^- e_L^-$ -Korrelation haben gezeigt, dass nicht mit elektrischer Wechselwirkung zu rechnen ist. Bei der  $e^- e^-$ - wie bei der  $e^- \gamma$ -R.K. kann jedoch eine instationäre magnetische Wechselwirkung mit dem Magnetfeld der angeregten Hülle stattfinden. Wir müssen daher bei der Interpretation der Resultate auch Schwächungsfaktoren  $0 \leq G_k \leq 1$  berücksichtigen. Die  $e_K^- \gamma$ -Korrelation hat dann die Form

$$W(\Theta)_{e_K^- \gamma} = 1 + G_2 A_2(e^- \gamma) P_2(\cos \Theta) + G_4 A_4(e^- \gamma) P_4(\cos \Theta),$$

wobei in den  $A_k(e^- \gamma)$  die Mischungsverhältnisse als Parameter enthalten sind. Da keine Theorie der instationären Beeinflussung existiert, setzen wir in erster Näherung  $G_4 = G_2$ .

Die Messungen ergeben folgende Werte:

$$\begin{aligned} G_2 A_2(e^- \gamma) &= 0,102 \pm 0,005 \\ G_4 A_4(e^- \gamma) &= 0,000 \pm 0,007. \end{aligned}$$

Der Fall (a) stimmt unter folgenden Voraussetzungen damit überein:  $-0,1 \leq \delta_1 \leq 0$ ,  $0,41 \leq G_2 \leq 0,46$ ,  $G_4 \approx G_2$ . Diese Angaben zeigen, dass die kleine erlaubte Beimischung von  $E5$  die Korrelation nicht sehr stark ändert. Im angegebenen Bereich für  $\delta_1$  ist auf alle Fälle eine Schwächung der Korrelation zu verzeichnen. Die Werte für  $\delta_1$  und  $G_2$  sind dabei so ermittelt worden, dass  $G_2 A_2(e^- \gamma)$  den gemessenen Wert 0,102 annimmt und  $G_4 A_4(e^- \gamma)$  zwischen die Grenzen  $-0,01$  und  $+0,01$  zu liegen kommt.

Nach den gleichen Gesichtspunkten haben wir den Fall (b) untersucht. Das Vorgehen wird durch die Doppelmischung etwas komplizierter: Wir bestimmen den Bereich in der Ebene  $\delta_1, \delta_2$ , in dem der theoretische Koeffizient  $G_2 A_2$  den Messwert 0,102 annimmt. Wie vorher beschränken wir uns auf  $\delta_1^2 \leq 0,01$  und  $\delta_2^2 \geq 100$ , während der Schwächungsfaktor  $0 \leq G_2 \leq 1$  sein kann. Zu jedem Punkt dieses Bereichs gehört ein bestimmtes Zahlentripel  $\delta_1, \delta_2$  und  $G_2$ . Wir können nun das Verhalten des Termes  $G_4 A_4$  innerhalb des Be-

reichs ausrechnen, wenn wir wieder näherungsweise  $G_4 \approx G_2$  setzen. Die Durchführung dieser Rechnung zeigt, dass der Term  $G_4 A_4$  immer grösser als 0,01 bleibt und somit nie mit dem Messwert  $0,000 \pm 0,007$  übereinstimmt. Damit wird aber der Fall (b) mit der Spinfolge  $13/2 \rightarrow 5/2 \rightarrow 3/2$  ausgeschlossen.

Das Resultat unserer Messungen ist also das folgende: Der Zerfall des  $\text{Hg}^{197}$  wird im wesentlichen durch das bisher geltende Zerfallschema (Fig. 11) beschrieben. Eine kleine Beimischung von  $E 5$  zu  $M 4$  im ersten Übergang kann nicht ausgeschlossen werden. Der Spin des Grundzustandes ist, in Übereinstimmung mit einer in der Zwischenzeit publizierten optischen Messung<sup>38)</sup>,  $1/2$ . Die  $e_{\bar{K}}\text{-}\gamma$ -Korrelation ist gestört durch instationäre magnetische Wechselwirkung. Die auftretenden Schwächungsfaktoren sind von der Grössenordnung 0,5.

COBURN und FRANKEL<sup>20)</sup> haben an der gleichen Kaskade ebenfalls  $e_{\bar{K}}\text{-}\gamma$ -Messungen durchgeführt. Ihr Resultat  $G_2 A_2 = 0,11 \pm 0,02$  ist mit unsern Messungen in Übereinstimmung, erlaubt jedoch allein keine Unterscheidung zwischen den von uns diskutierten Fällen.  $e_{\bar{K}}\text{-}e_{\bar{K}}$ -Experimente von BREITENBERGER<sup>39)</sup> liefern Ergebnisse, die (unter der Annahme magnetischer Schwächung) auch mit unserm Resultat übereinstimmen.

## 10. Experimente an $\text{Ta}^{181}$ .

### A. Einleitung.

Der Kern  $\text{Ta}^{181}$  besitzt ein sehr grosses Quadrupolmoment und ist aus diesem Grunde Gegenstand vieler Experimente<sup>40) 41) 42) 43)</sup> und Vergleiche mit Modellen deformierter Kerne gewesen<sup>44) 45)</sup>. In der Interpretation der Resultate bestehen zwischen verschiedenen Autoren grosse Widersprüche. Wir setzten uns daher zum Ziel, Klarheit über diesen komplizierten Zerfall (Fig. 12 und 13) zu schaffen.

Über das Resultat dieser Experimente wird in einer separaten Arbeit berichtet werden<sup>46)</sup>. Hier soll nur auf die Konversionselektronenkorrelation der Kaskade 132 keV—480 keV näher eingetreten werden.

Die bisher bekannten Ergebnisse, soweit sie die uns interessierende Kaskade 132 keV—480 keV betreffen, lassen sich folgendermassen zusammenfassen: Die von MCGOWAN<sup>42)</sup> vorgeschlagene Spinfolge  $5/2 \rightarrow 9/2 \rightarrow 7/2$  stimmt nicht. Das folgt sowohl aus den Resultaten der von MCGOWAN selbst durchgeführten Messungen der verzögerten R.K., wie auch aus theoretischen Überlegungen<sup>44)</sup>.

Unsere eigenen  $\gamma\text{-}\gamma\text{-R.-K.}$ -Messungen an ungestörten Hf-Flusssäurequellen schliessen die von MCGOWAN postulierte Spinzuord-

nung aus, stimmen jedoch sehr gut überein mit dem Zertall (für die 132 keV—480 keV-Kaskade)  $1/2 \xrightarrow{E2} 5/2 \xrightarrow{M1+E2} 7/2$ , mit  $G_2 = G_4 = 1$  (keine Schwächung) und einem Mischungsverhältnis  $\delta_2 = +6,6 \pm 0,8$ . Mit Ausnahme der  $K$ -Konversionskoeffizienten<sup>41)47)</sup> passen alle

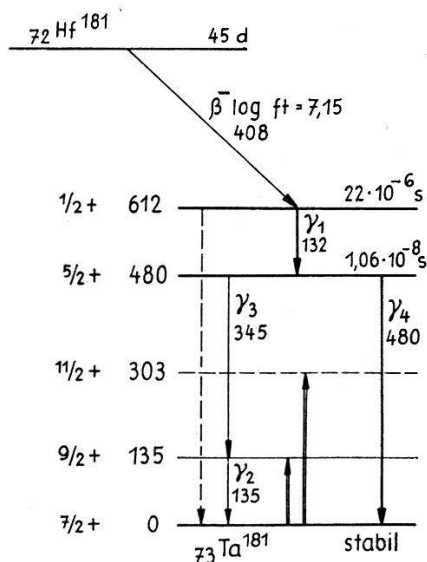


Fig. 12.

Zerfallsschema des  $Hf^{181}$ . Die Coulomb-Anregung ist durch Doppelpfeile charakterisiert.

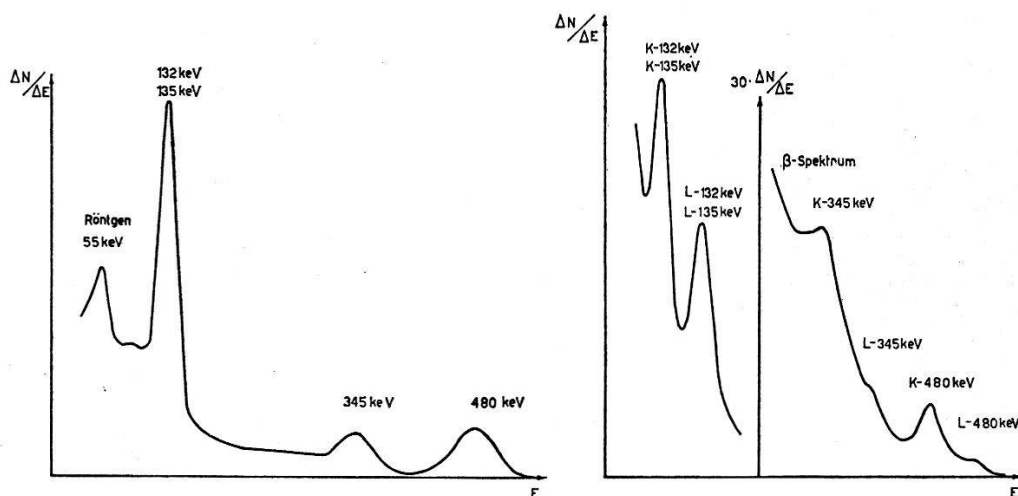


Fig. 13.

$\gamma$ - und Konversionselektronen-Impulsspektrum von  $Hf^{181} - Ta^{181}$ . Das  $\gamma$ -Spektrum ist aufgenommen mit einem NaJ-Kristall und (0,3 mm Sn + 0,1 mm Cu)-Absorber, das  $e^-$ -Spektrum mit einem Anthracenkristall.

experimentellen Resultate gut in dieses Schema hinein, und auch theoretische Überlegungen<sup>44)</sup> lassen die vorgeschlagene Zuordnung als sehr wahrscheinlich erscheinen. Die Diskrepanz bei den  $K$ -Konversionskoeffizienten besteht darin, dass die experimentellen Werte von McGOWAN<sup>41)</sup> und FAN<sup>47)</sup>, die allerdings stark voneinander ab-

weichen, für den 480 keV-Übergang ein kleineres Mischungsverhältnis  $\delta$  verlangen als unsere  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K.-Experimente.

Neben der besprochenen Spinfolge  $1/2 \rightarrow 5/2 \rightarrow 7/2$  ergeben auch die Möglichkeiten  $5/2 \rightarrow 7/2 \rightarrow 7/2$  und  $9/2 \rightarrow 9/2 \rightarrow 7/2$  mit Mischungen von  $M1$  und  $E2$  in beiden Übergängen Übereinstimmung zwischen Theorie und  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K.-Experiment, sind jedoch aus andern Gründen weniger wahrscheinlich. Um allein auf Grund der R. K. entscheiden zu können, welche Spinzuordnung in Wirklichkeit zutrifft, haben wir an der 132 keV—480 keV-Kaskade zusätzliche  $\gamma$ - $e_K^-$ - und  $e_K^-$ - $\gamma$ -Messungen durchgeführt.

### B. Quellenherstellung.

Die Aktivität  $\text{Hf}^{181}$  steht in der Form von  $\text{HfO}_2$ -Pulver, das in der Pile von Harwell mit Neutronen bestrahlt wurde, zur Verfügung. Gegenüber Zyklotronpräparaten bringt das den Nachteil mit sich, dass neben der Aktivität immer ein grosser Anteil chemisch gleichwertigen, stabilen Materials vorhanden ist. Der Herstellung dünner und trotzdem genügend starker Quellen sind damit Grenzen gesetzt.

Nur Flußsäurequellen ( $\text{HfF}_4$  gelöst in  $\text{HF}$ ) zeigen die ungestörte R.K. Alle andern, insbesondere feste Quellen, weisen eine grosse Schwächung durch elektrische Wechselwirkung auf. Da es nicht gelingt, genügend dünne Flußsäurequellen herzustellen, benützen wir für die Konversionselektronenkorrelation feste Präparate. Die dann auftretende Störung können wir eliminieren, indem wir an jeder Quelle die  $\gamma$ - $\gamma$ - und die  $\gamma$ - $e_K^-$ -R.K. messen. Der Quotient  $G_k A_k(\gamma e^-) / G_k A_k(\gamma \gamma) = A_k(\gamma e^-) / A_k(\gamma \gamma) = f_k(e_2^-, I_2, I) / f_k(\gamma_2, I_2, I)$  gibt uns dann, unabhängig von der Beeinflussung und vom ersten Übergang der Kaskade, Aussagen über die 480 keV-Linie (siehe Gleichung (3), Seite 151).

Feste, kristalline  $\text{HfF}_4$ -Quellen wurden wie folgt hergestellt: Aktives  $\text{HfO}_2$  wird in einem Platintiegel in  $\text{HF}$  gelöst. Durch vorsichtiges Eindampfen gewinnen wir daraus  $\text{Hf}(\text{OF})_2 \times 8\text{H}_2\text{O}$ . Aus einem Kohleschiffchen dampfen wir dieses auf eine aluminisierte Formvarhaut auf. Vor dem Verdampfen (Sublimieren) entweicht das Kristallwasser, so dass die aufgedampfte Schicht aus  $\text{HfF}_4$  besteht. Die Schichtdicke lässt sich aus der bekannten spezifischen Aktivität bestimmen. Für die  $e^-$ - $\gamma$ -R.K. wurden ca.  $0,2 \text{ mg/cm}^2$  dicke Präparate verwendet, während bei der  $\gamma$ - $e^-$ -Korrelation die grössere Elektronenenergie Quellendicken von ca.  $1 \text{ mg/cm}^2$  zuliess.

$\text{HfF}_4$ -Quellen haben den Nachteil, dass infolge starker elektrischer Wechselwirkung die zu messenden Koeffizienten der Winkelverteilung sehr klein werden (Schwächungsfaktoren  $G_2 \approx 0,2$ ). Der Fehler

von  $A_2(\gamma e^-)/A_2(\gamma\gamma)$ , der sich aus den Messfehlern von  $G_2A_2(\gamma e^-)$  und  $G_2A_2(\gamma\gamma)$  zusammensetzt, wird dadurch relativ gross. Versuche, dünne, feste Quellen herzustellen, die kleinere Schwächung aufweisen, waren ergebnislos. Es lässt sich zwar ein kubisches Hf-Salz,  $\text{Rb}_2\text{HfCl}_6$ , herstellen, das nur eine kleine Schwächung zeigt. Es ist jedoch nur im Überschuss von  $\text{HCl conc.}$  beständig und kann daher nicht in die Form eines dünnen Präparates verarbeitet werden. Aus  $\text{Rb}_2\text{HfCl}_6$  haben wir auch  $\text{HfCl}_4$  gewonnen, das jedoch wie  $\text{HfF}_4$  stark geschwächt war. Das gleiche Ergebnis zeigten die ebenfalls untersuchten Verbindungen  $\text{Hf}(\text{SO}_4)_2$  und  $\text{HfOCl}_2$ .

### C. Resultate.

Wir haben zuerst die  $\gamma e_{\bar{K}}$ -R.K. untersucht, da sie in Verbindung mit  $\gamma\gamma$ -Messungen unabhängig von Schwächungserscheinungen einen direkten Vergleich mit der Theorie erlaubt. Die zu messenden Anisotropien waren aus den bereits erwähnten Gründen klein, weshalb beim  $\gamma e_{\bar{K}}$ -Experiment grosse Sorgfalt auf Vermeidung von anisotropen Störeffekten verwendet werden musste. Es zeigte sich z. B., dass unsere ersten Messungen<sup>48)</sup> durch gestreute  $\gamma$ -Quanten verfälscht waren. Zur Behebung dieses Effekts wurden beim NaJ-Kristall seitliche Bleiabsorber angebracht. Die Messungen ergaben

$$A_2(\gamma e_{\bar{K}})/A_2(\gamma\gamma) = 0,19 \pm 0,13.$$

Der grosse Fehler ist durch die kleine Anisotropie der Winkelverteilungen und durch die geringe Intensität (niedrige  $K$ -Konversion der 480 keV-Linie) bedingt.

Die  $\gamma\gamma$ -Messungen an ungestörten Flußsäurequellen stimmen mit den Zerfällen  $1/2 \rightarrow 5/2 \rightarrow 7/2$ ,  $5/2 \rightarrow 7/2 \rightarrow 7/2$  und  $9/2 \rightarrow 9/2 \rightarrow 7/2$  überein für gewisse Mischungsverhältnisse im zweiten, bzw. im ersten und im zweiten Übergang. In den beiden zuletzt genannten Fällen (mit Mischungen in beiden Übergängen) ergibt die Berechnung der zugehörigen  $\gamma e_{\bar{K}}$ -R.K., dass  $A_2(\gamma e_{\bar{K}})/A_2(\gamma\gamma)$  immer negatives Vorzeichen besitzt. Mit unserm Messwert ist das nicht vereinbar, d. h. die  $\gamma e_{\bar{K}}$ -Messungen schliessen sowohl die Sequenz  $5/2 \rightarrow 7/2 \rightarrow 7/2$  wie auch  $9/2 \rightarrow 9/2 \rightarrow 7/2$  aus. Für die Möglichkeit  $1/2 \rightarrow 5/2 \rightarrow 7/2$  stimmt dagegen unser Experiment gut mit der Theorie überein für Mischungen von  $M 1$  und  $E 2$  im 480 keV-Übergang mit  $2,8 \leq \delta_2 \leq 4,8$ .

Bei der  $e_{\bar{K}}\gamma$ -Korrelation müssen wir wie im Falle des  $\text{Hg}^{197}$  mit



einer zusätzlichen magnetischen Schwächung der Korrelation rechnen. Das Resultat der Messungen

$$G_2(e^-_K\gamma) A_2(e^-_K\gamma)/G_2(\gamma\gamma) A_2(\gamma\gamma) = 0,74 \pm 0,07$$

ist mit der Theorie für den Zerfall  $1/2 \rightarrow 5/2 \rightarrow 7/2$  ebenfalls in Übereinstimmung für Schwächungsfaktoren  $0,37 \leq G_2(e^-_K\gamma)/G_2(\gamma\gamma) \leq 0,45$ . Damit ist das Vorhandensein einer zusätzlichen magnetischen Wechselwirkung bei der  $e^-$ - $\gamma$ -Korrelation sowohl im Falle des Hg<sup>197</sup> wie des Ta<sup>181</sup> nachgewiesen. Man muss demzufolge bei der  $e^-$ - $\gamma$ -Korrelation und auch bei  $\gamma$ - $\gamma$ -Kaskaden, denen ein  $K$ -Einfang vorangeht, bei  $Z \approx 80$  und Lebensdauern  $\tau_K \gtrsim 10^{-9}$  sec mit (zusätzlichen) Schwächungsfaktoren der Grössenordnung 0,5 rechnen.

Die Experimente der Konversionselektronenkorrelation gestatten es also, der 132 keV–480 keV-Kaskade des Hf<sup>181</sup> eindeutig die Spins  $1/2$ ,  $5/2$  und  $7/2$  zuzuordnen, mit einem reinen  $E 2$  im ersten und einer Mischung  $M 1 + E 2$  im zweiten Übergang. Da die  $\gamma$ - $e^-_K$ -Korrelation ein viel kleineres  $A_2$  aufweist als die  $\gamma$ - $\gamma$ -R. K., muss der 480 keV-Übergang unbedingt eine Beimischung von  $M 1$  zeigen, da für höhere Multipole  $A_2(e^-_K\gamma)/A_2(\gamma\gamma)$  immer grösser als 1 ist.

Eine kleine Diskrepanz besteht nur beim Wert des Mischungsverhältnisses, das der 480 keV-Linie auf Grund der verschiedenen Experimente zugeordnet wird:

$\gamma$ - $\gamma$ -R. K.	$5,8 \leq \delta_2 \leq 7,4$
$\gamma$ - $e^-_K$ -R. K.	$2,8 \leq \delta_2 \leq 4,8$
(Konversionskoeffizienten	$0,6 \leq \delta_2 \leq 2,6$ )

Das aus den gemessenen Konversionskoeffizienten berechnete Mischungsverhältnis ist dabei als sehr unsicher zu betrachten, da die zur Verfügung stehenden experimentellen Werte sehr stark schwanken. Eine eigene Bestimmung der Konversionskoeffizienten war nicht möglich, da keine Quellen mit genügender spezifischer Aktivität zur Verfügung standen. Die theoretischen Konversionskoeffizienten sind nach den neuen Tabellen von SLIV<sup>49</sup>) berechnet worden.

Der kleine Unterschied, der zwischen den  $\delta$ -Werten der  $\gamma$ - $\gamma$ - und der  $\gamma$ - $e^-_K$ -R. K. besteht, kann eventuell durch die Tatsache erklärt werden, dass nach privaten Mitteilungen von MARMIER und von SUNYAR beim Zerfall des Ta<sup>181</sup> eine neue, intensitätsschwache Linie von ca. 136 keV Energie gefunden wurde. Die theoretischen Partikelparameter  $b_k$  der Konversionselektronenkorrelation werden ferner wie die Konversionskoeffizienten von ROSE<sup>50</sup>) bei hohen  $Z$ -Abweichungen von den Werten von BIEDENHARN und ROSE zeigen, was ebenfalls ein Grund für die bestehende Diskrepanz sein kann.

### 11. Schlussbetrachtungen.

Die Konversionselektronenkorrelation hat sich als ein wertvolles Hilfsmittel der Kernspektroskopie erwiesen. Nachdem wir am Zerfall des  $\text{Cd}^{111}$  durch Messung der  $\gamma$ - $\gamma$ -,  $\gamma$ - $e_K^-$ -,  $e_K^-$ - $\gamma$ - und  $e_K^-$ - $e_K^-$ -Korrelationen die experimentellen Methoden erprobt und die Theorie bestätigt haben, ist es gelungen, beim Zerfall des  $\text{Hg}^{197}$  mit Hilfe der  $e_K^-$ - $\gamma$ -Korrelation zwischen zwei möglichen Zerfallsschemen die Entscheidung zu treffen und den Spin des Grundzustandes eindeutig zu  $1/2$  festzulegen.  $\gamma$ - $e_K^-$ - und  $e_K^-$ - $\gamma$ -Messungen an  $\text{Ta}^{181}$ -Quellen haben das auf Grund der  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K. vermutete Zerfallschema bestätigt. Gleichzeitig ist beim  $\text{Hg}^{197}$  wie beim  $\text{Ta}^{181}$  für die  $e^-$ - $\gamma$ -Korrelation eine Schwächung, herrührend vom Magnetfeld der angeregten Elektronenhülle, nachgewiesen worden.

Die Schwierigkeiten, die bei Messungen der Konversionselektronenkorrelation auftreten, sind in der vorliegenden Arbeit eingehend beschrieben. Sie haben zur Folge, dass  $\gamma$ - $e^-$ - und  $e^-$ - $\gamma$ -Experimente nur dort zur Anwendung gelangen, wo die experimentell einfachere  $\gamma$ - $\gamma$ -R.K. nicht zum Ziele führt. In diesen Fällen leistet jedoch die Konversionselektronenkorrelation nützliche Dienste, und sie wird auch in Zukunft zur systematischen Erforschung angeregter Kernzustände ihren Beitrag leisten.

Den Herren Dr. H. ALBERS-SCHÖNBERG, R. RÜETSCHI, H. J. GERBER, P. DEBRUNNER, W. KÜNDIG und S. GYGAX sind wir für viele Diskussionen und Mithilfe bei einzelnen Messungen zu Dank verpflichtet, ebenso den Herren vom Zyklotron für die ausgeführten Bestrahlungen.

### Literaturverzeichnis.

- 1) D. R. HAMILTON, Phys. Rev. **58**, 122 (1940).
- 2) H. FRAUENFELDER, aus "Beta- and Gamma-ray spectroscopy" edited by K. Siegbahn (North-Holland publishing company, Amsterdam, 1955).
- 3) L. C. BIEDENHARN and M. E. ROSE, Revs. Modern Phys. **25**, 727 (1953).
- 4) M. E. ROSE, Phys. Rev. **93**, 477 (1954).
- 5) M. FERENTZ and N. ROSENZWEIG, ANL — 5324 (1955).
- 6) H. AEPPLI, H. ALBERS-SCHÖNBERG, H. FRAUENFELDER und P. SCHERRER, Helv. Phys. Acta **25**, 339 (1952).
- 7) H. ALBERS-SCHÖNBERG, E. HEER, T. B. NOVEY und P. SCHERRER, Helv. Phys. Acta **27**, 547 (1954).
- 8) H. ALBERS-SCHÖNBERG, E. HEER und P. SCHERRER, Helv. Phys. Acta **27**, 637 (1954).
- 9) A. ABRAGAM and R. V. POUND, Phys. Rev. **92**, 943 (1953).
- 10) K. ALDER, Helv. Phys. Acta **25**, 235 (1952).
- 11) K. ALDER, H. ALBERS-SCHÖNBERG, E. HEER und T. B. NOVEY, Helv. Phys. Acta **26**, 761 (1953).
- 12) R. M. STEFFEN, Phil. Mag. Suppl. **4**, 293 (1955).

- 13) A. H. WARD and D. WALKER, *Nature* **163**, 168 (1949).
- 14) M. WALTER, O. HUBER und W. ZÜNTI, *Helv. Phys. Acta* **23**, 697 (1950).
- 15) D. T. STEVENSON and M. DEUTSCH, *Phys. Rev.* **83**, 1202 (1951).
- 16) F. K. MCGOWAN, *Phys. Rev.* **92**, 524 (1953).
- 17) N. GOLDBERG and S. FRANKEL, *Phys. Rev.* **93**, 1425 (1954).
- 18) R. K. GOLDEN and S. FRANKEL, *Phys. Rev.* **95**, 613 (1954).
- 19) F. GIMMI, E. HEER und P. SCHERRER, *Z. Physik* **138**, 394 (1954).
- 20) H. H. COBURN and S. FRANKEL, *Phys. Rev.* **99**, 671 (1955).
- 21) E. LOEPFE, *Schweiz. techn. Z.* 570 (1955).
- 22) J. S. LAWSON and H. FRAUENFELDER, *Phys. Rev.* **91**, 649 (1953).
- 23) A. M. FEINGOLD and S. FRANKEL, *Phys. Rev.* **97**, 1025 (1955).
- 24) E. BREITENBERGER, *Proc. Phys. Soc. A* **66**, 846 (1953).
- 25) E. BREITENBERGER, *Phil. Mag.* **7**, 45, 497 (1954).
- 26) S. FRANKEL, *Phys. Rev.* **83**, 673 (1951).
- 27) S. FRANKEL, unpublizierte Arbeit.
- 28) S. GOUDSMIT and J. L. SAUNDERSON, *Phys. Rev.* **57**, 24 (1940).
- 29) S. GOUDSMIT and J. L. SAUNDERSON, *Phys. Rev.* **58**, 36 (1940).
- 30) K. STROHMAIER, *Z. Naturforsch.* **6a**, 508 (1951).
- 31) C. L. MCGINNIS, *Phys. Rev.* **81**, 734 (1951).
- 32) H. ALBERS-SCHÖNBERG, F. HAENNI, E. HEER, T. B. NOVEY and P. SCHERRER, *Phys. Rev.* **90**, 322 (1953).
- 33) A. DE SHALIT, O. HUBER und H. SCHNEIDER, *Helv. Phys. Acta* **25**, 279 (1952).
- 34) I. BERGSTROEM, R. D. HILL and G. DE PASQUALI, *Phys. Rev.* **92**, 918 (1953).
- 35) L. P. GILLON, K. P. GOPALAKRISHNAN, A. DE SHALIT and J. W. MIHELICH, *Phys. Rev.* **93**, 124 (1954).
- 36) R. JOLY, J. BRUNNER, J. HALTER und O. HUBER, *Helv. Phys. Acta* **28**, 403 (1955).
- 37) H. H. BOLOTIN and R. G. WILKINSON, *Phys. Rev.* **99**, 671 (1955).
- 38) F. BITTER, S. P. DAVIS, B. RICHTER and J. E. R. YOUNG, *Phys. Rev.* **96**, 1531 (1954).
- 39) E. BREITENBERGER, *Nature* **173**, 737 (1954).
- 40) T. HUUS and C. ZUPANCIC, *Dan. Mat. Fys. Medd.* **28**, Nr. 1 (1953).
- 41) F. K. MCGOWAN, *Phys. Rev.* **93**, 163 (1954).
- 42) F. K. MCGOWAN, *Phys. Rev.* **93**, 471 (1954).
- 43) E. HEER, R. RÜETSCHI und P. SCHERRER, *Z. Naturforsch.* **10a**, 834 (1955).
- 44) G. ALAGA, K. ALDER, A. BOHR and B. R. MOTTELSON, *Dan. Mat. Fys. Medd.* **29**, Nr. 9 (1955).
- 45) B. R. MOTTELSON and S. G. NIELSON, *Phys. Rev.* **99**, 1615 (1955).
- 46) P. DEBRUNNER, E. HEER, W. KÜNDIG und R. RÜETSCHI, erscheint in *Helv. Phys. Acta*.
- 47) C. Y. FAN, *Phys. Rev.* **87**, 252 (1952).
- 48) F. GIMMI, E. HEER und P. SCHERRER, *Helv. Phys. Acta* **28**, 470 (1955).
- 49) L. A. SLIV, Tabellen der K-Konversionskoeffizienten, unpubliziert.
- 50) M. E. ROSE, G. H. GOERTZEL, B. I. SPINRAD, J. HARR and P. STRONG, *Phys. Rev.* **83**, 79 (1951).