

# Messungen mit einem lichtstarken $\gamma$ -Spektrometer mit plastisch gebogenem LiF-Kristall\*

WALTER MOLL

Laboratorium für Technische Physik der Technischen Hochschule München

(Z. Naturforschg. 20 a, 730—736 [1965]; eingegangen am 29. Dezember 1964)

Ein  $\gamma$ -Spektrometer vom DuMOND-Typ für den niederenergetischen Bereich, mit einer Fokallänge von 50 cm und einem Raumwinkel von  $4 \cdot 10^{-3}$  sr, wurde mit einem plastisch gebogenen LiF-Monochromator ausgerüstet. Es wurde eine Lichtstärke von  $3 \cdot 10^{-5}$  bei 20 keV und  $0,8 \cdot 10^{-5}$  bei 100 keV bei einem Auflösungsvermögen von 1% bzw. 5% erreicht. Damit wurde im  $\gamma$ -Spektrum von Ta<sup>182</sup> außer bekannten Linien die Energie und Intensität einer Linie bei 31,75 keV gemessen.

Das  $\gamma$ -Spektrometer mit gebogenem Kristall, 1930 von DuMOND und KIRKPATRICK<sup>1</sup> vorgeschlagen und seither in zahlreichen Ausführungen verwirklicht<sup>2-9</sup>, ermöglicht wegen seines hohen Auflösungsvermögens die genauesten Energie- und Intensitätsmessungen niederenergetischer  $\gamma$ -Linien. Dieser Vorteil wird erkauft durch eine sehr geringe Nachweiswahrscheinlichkeit, die das Arbeiten mit intensitätsschwachen Quellen und insbesondere Koinzidenzmessungen unmöglich macht. Gegenstand der vorliegenden Arbeit ist ein Kristallspektrometer mit extrem hoher Lichtstärke. Sie kann prinzipiell nur auf Kosten des Auflösungsvermögens erreicht werden. Da das Auflösungsvermögen, im Gegensatz zu dem anderer spektrometrischer Methoden, mit abnehmender Energie zunimmt, liegt der Anwendungsbereich eines solchen Instruments vorzugsweise bei niedrigen Energien.

## I. Methode

Da hohe Lichtstärke, d. h. hohe Nachweiswahrscheinlichkeit für die von einer Quelle isotrop ausgestrahlten  $\gamma$ -Strahlen angestrebt wird, kommen nur die Anordnungen nach DuMOND<sup>2</sup> (vgl. Abb. 1 a) oder nach JOHANN<sup>10</sup> (Abb. 1 b) in Frage. Bei beiden können die von der Quelle ausgehenden Strahlen auf

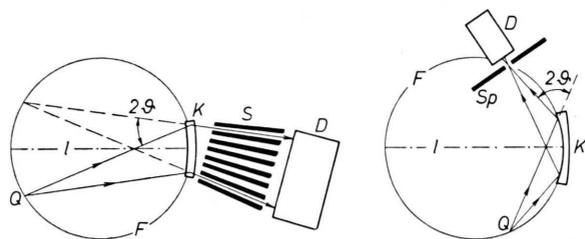


Abb. 1. Strahlengang des Kristallspektrometers nach DuMOND (a) und JOHANN (b). Q Quelle, K Kristall, D Detektor. Der Kristall ist zylindrisch auf den Radius  $l$  gebogen, der Fokalkreis  $F$  hat den Radius  $l/2$ . Sollerkolimator  $S$  und Spalt  $Sp$  verhindern den Eintritt direkter Strahlen in den Detektor.

der ganzen Kristallfläche gleichzeitig der BRAGGSchen Bedingung  $n\lambda = 2d \sin \theta_B$  genügen. Falls nicht bei sehr kleinen Winkeln die Absorption im Kristall ihre Anwendung verbietet, ist die in Transmission arbeitende DuMOND-Anordnung vorteilhafter, da sie den streifenden Einfall der Strahlung auf den Kristall vermeidet. Deshalb kann in der Regel auf ein Ausschleifen des auf den Radius  $l$  gebogenen Kristalls auf den Radius  $l/2$ , nach JOHANSSON<sup>11</sup>, verzichtet werden. Ferner kann bei praktisch konstantem Fokalabstand die Bewegung der Quelle längs des Fokalkreises durch eine Drehung des Kristalls realisiert werden. Sollerkolimator und Detektor (vgl. Abb. 1 a) sind dabei um den doppelten Winkel zu schwenken.

\* Auszug aus der von der Fakultät für Allgemeine Wissenschaften der Technischen Hochschule München genehmigten Dissertation.

<sup>1</sup> J. W. M. DuMOND u. H. KIRKPATRICK, Rev. Sci. Instrum. **1**, 90 [1930].

<sup>2</sup> J. W. M. DuMOND, Rev. Sci. Instrum. **18**, 626 [1947].

<sup>3</sup> N. RYDE u. B. ANDERSSON, Proc. Phys. Soc., Lond. B **68**, 12, 1117 [1955].

<sup>4</sup> J. W. KNOWLES, Atomic Energy of Canada Ltd., Chalk River Report GPI-42 [1957].

<sup>5</sup> O. I. SUMBAYEV, Soviet Phys.-JETP **5**, 170 [1957].

<sup>6</sup> D. ROSE, H. OSTRANDER u. B. HAMERMESH, Rev. Sci. Instrum. **28**, 233 [1957].

<sup>7</sup> O. BECKMANN, P. BERGVALL u. B. AXELSSON, Ark. Fys. **14**, 419 [1958].

<sup>8</sup> O. SCHULT, Z. Phys. **158**, 444 [1960].

<sup>9</sup> U. GRUBER, B. P. MAIER u. O. W. B. SCHULT, Kerntechnik **5**, (Heft 1), 17 [1963].

<sup>10</sup> H. JOHANN, Z. Phys. **69**, 185 [1931].

<sup>11</sup> T. JOHANSSON, Z. Phys. **82**, 507 [1933].

Die Lichtstärke des DuMOND-Spektrometers, d. h. die Nachweiswahrscheinlichkeit eines Quants ohne Berücksichtigung der Absorption in der Quelle und ohne Zählverluste im Detektor, ist gegeben durch:

$$L = \frac{\Omega}{4\pi} \frac{R_H}{\omega} a_K. \quad (1)$$

$\Omega$  ist der Raumwinkel, unter dem der Kristall von der Quelle aus gesehen wird,  $a_K$  die Durchlässigkeit des Sollerkollimators,  $\omega$  die instrumentelle Linienbreite,  $R_H$  das integrale Reflexionsvermögen des Kristalls, und mit genügender Genauigkeit ist  $R_H/\omega$  das Reflexionsvermögen des Kristalls im Linienmaximum. Das Auflösungsvermögen ist

$$A = \Delta E/E = \omega/\vartheta_B. \quad (2)$$

Durch Vergrößern des Raumwinkels  $\Omega$  und Wahl eines Kristalls mit größerem integralen Reflexionsvermögen  $R_H$  kann die Lichtstärke nicht beliebig gesteigert werden, da gleichzeitig die Linienbreite  $\omega$  wächst. Dieser Zusammenhang ist entscheidend für die Dimensionierung des Spektrometers und die Wahl des Kristalls.

Die Linienbreite  $\omega$  setzt sich zusammen aus einzelnen partiellen Winkelbreiten, nämlich aus der natürlichen Spektralbreite der Strahlung, aus  $\omega_M$ , der Halbwertsbreite der Reflexionskurve (*diffraction pattern*) des Kristalls, aus  $\omega_K$ , einer durch unvollkommene Krümmung und makroskopische Fehler des Kristalls hervorgerufenen Defokussierungsweite, und aus  $\omega_g$ , der durch die Geometrie des Spektrometers bedingten Linienverbreiterung. Mit genügender Genauigkeit ist  $\omega$  durch „quadratische Addition“ dieser partiellen Breiten ( $\omega^2 = \sum \omega_i^2$ ) gegeben und damit durch das jeweils größte  $\omega_i$  im wesentlichen bestimmt.

Die Vergrößerung des Raumwinkels wird, da die erhältlichen Kristalldimensionen begrenzt sind, vorzugsweise durch Verkleinern der Fokallänge erfolgen. Dabei wird im allgemeinen auch die relative Ungenauigkeit der Kristallbiegung zunehmen. Außerdem wächst die Winkelbreite  $\omega_Q$ , unter der die Quelle vom Kristall aus gesehen wird, proportional zu  $1/l$  bzw.  $\sqrt{\Omega}$ . Sobald sie die gesamte Linienbreite bestimmt, nimmt die Lichtstärke nur noch proportional zu  $\sqrt{\Omega}$  zu. Ferner verursachen die

Strahlen, die wegen der Höhe  $H$  des Kristalls schräg gegen die Zeichenebene der Abb. 1 verlaufen, eine mittlere Winkelabweichung, die proportional zu  $H^2 \operatorname{tg} \vartheta_B/l^2$  ist<sup>12</sup>, und die Randbereiche eines nicht ausgeschliffenen Kristalls der Breite  $B$  eine zu  $B^2 \sin \vartheta_B/l^2$  proportionale Defokussierung. Beide Effekte können zu einer zu  $\Omega \vartheta_B$  proportionalen „Aperturbreite“ zusammengefaßt werden. Falls diese die übrigen  $\omega_i$  überwiegt, ist die Lichtstärke von  $\Omega$  unabhängig und die Grenze für eine sinnvolle Vergrößerung des Raumwinkels erreicht. Diese Grenze hängt jedoch von den übrigen Winkelbreiten, insbesondere der Mosaikbreite des Kristalls ab.

Ist durch die Geometrie des Spektrometers eine partielle Linienbreite vorgegeben, so sollte die Mosaikverteilungsbreite  $\omega_M$  des Kristalls von derselben Größenordnung sein. Wir können stets mit dem *diffraction pattern* des Mosaikkristalls rechnen, da auch Kristalle, die im ebenen Zustand ideal sind, bei elastischer (wegen der Krümmung der Netzebenen<sup>13</sup>) oder plastischer Biegung Mosaikcharakter annehmen. Das integrale Reflexionsvermögen ist in Transmission ohne Berücksichtigung von Absorption und Extinktion<sup>14</sup>:

$$R_H = \left( \frac{r_0 F_H \lambda}{V} \right)^2 \frac{d_H}{n} \frac{1 - \cos^2 \vartheta_B}{2 \cos \vartheta_B} t. \quad (3)$$

Hier ist  $r_0 = e^2/mc^2 = 2,8 \cdot 10^{-13}$  cm,  $F_H$  der Strukturfaktor und  $d_H$  die Gitterkonstante der benutzten Netzebenenschar,  $V$  das Volumen der Elementarzelle,  $\lambda$  die Wellenlänge,  $n$  die Ordnung der Reflexion und  $t$  die Kristalldicke. Bei starken Reflexen, insbesondere bei kleinen Energien, weicht  $R_H$  von diesem zu  $E^{-2}$  proportionalen Verlauf ab, da das Reflexionsvermögen im Maximum des *diffraction pattern* nicht größer als 1/2 und deshalb  $R_H$  nicht größer als  $\omega_M/2$  werden kann. In diesem Bereich ist daher die Lichtstärke proportional zu  $\omega_M/\omega$ , und mit einer Vergrößerung von  $\omega_M$  ist ein Intensitätsgewinn verbunden, jedoch nur, solange  $\omega_M$  die übrigen  $\omega_i$  nicht überwiegt. Ein hochauflösendes Spektrometer mit kleinem Raumwinkel wird daher schon mit einem sehr perfekten Quarz<sup>9</sup>- oder Germaniumkristall<sup>15</sup> eine optimale Lichtstärke erreichen, ein Spektrometer mit großer Öffnung dagegen mit einem ausgeprägten Mosaikkristall. Durch Multiplikation von (3) bzw. von  $\omega_M/2$  mit dem Ab-

<sup>12</sup> O. SCHULT, Dissertation, Technische Hochschule, München 1959.

<sup>13</sup> O. I. SUMBAYEV, Soviet Phys.-JETP 5, 172 [1957].

<sup>14</sup> W. ZACHARIASEN, Theory of X-Ray Diffraction in Crystals, J. Wiley & Sons, Inc., New York 1946.

<sup>15</sup> E. J. SEPII, H. HENRIKSON, F. BOEHM u. J. W. M. DuMOND, Nucl. Instr. Methods 16, 17 [1962].

sorptionsfaktor  $e^{-\mu t}$  ergeben sich Kurven wie in Abb. 2, an Hand derer für den jeweiligen Spektralbereich der geeignete Kristall zu wählen ist. Die optimale Dicke ist etwas kleiner als  $1/\mu$ .

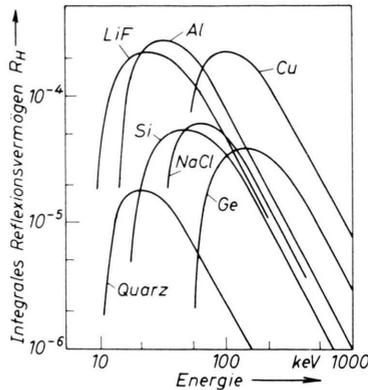


Abb. 2. Integrales Reflexionsvermögen einiger Kristalle in Transmission. Kristalldicke 1 mm. Es wurden jeweils die am besten reflektierende Netzebenenchar und eine typische Mosaikbreite gewählt: Quarz: (110), 4'; Si und Ge: (111), 6'; LiF und NaCl: (200), 3'; Al und Cu: (111), 3'.

Für das hier beschriebene Spektrometer wurde eine Fokallänge von 50 cm und eine Kristallöffnung von 35 mm  $\phi$  gewählt. Der Raumwinkel beträgt  $4 \cdot 10^{-3}$  sr. Die kleine Fokallänge bedeutet eine starke Krümmung, die nur bei extrem dünnen und daher schlecht reflektierenden Kristallen durch elastische Biegung zu erreichen ist. Dickere Scheiben müssen plastisch gekrümmt werden. Daß auch plastisch gebogene Kristalle fokussieren und nicht durch reine Scherung verformt sind, hat CAUCHOIS<sup>16</sup> gezeigt. Aus der Geometrie des Spektrometers allein ergibt sich bei einer 0,1 mm breiten Quelle eine Linienbreite von 45". Dies ist von derselben Größenordnung wie die bei plastisch verformten Kristallen mindestens zu erwartende Mosaikbreite. Tatsächlich zeigt es sich (vgl. Abschn. II), daß bei den meisten in Betracht kommenden Kristallen mit einer wesentlich größeren Struktur zu rechnen ist.

Ein genereller Vergleich verschiedener Spektrometer bezüglich Lichtstärke und Auflösungsvermögen ist wegen des komplexen und energieabhängigen Zusammenhangs dieser Größen nicht möglich, außerdem sind der meßbare Energiebereich, das verfügbare Quellenvolumen und ähnliche Größen zu berücksichtigen. In Abb. 3 sind einige Spektrometer

vom DuMOND-Typ nach Lichtstärke und Auflösungsvermögen, beide bei 60 keV genommen, eingetragen, soweit die Werte aus den Veröffentlichungen zu entnehmen oder abzuschätzen waren. Der Vergleich des hier beschriebenen Spektrometers (vgl. Abschn. II) mit einem von DAY<sup>17</sup> gebauten zeigt, daß mit einer weiteren Vergrößerung des Raumwinkels keine höhere Lichtstärke verbunden ist, solange nicht der instrumentellen Linienbreite angepaßte Mosaikkristalle verwendet werden.

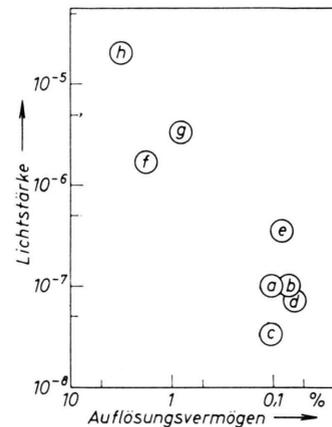


Abb. 3. Vergleich einiger Spektrometer vom DuMOND-Typ nach Lichtstärke und Auflösungsvermögen. a) DuMOND<sup>2</sup>, b) ROSE<sup>8</sup>, c) BECKMANN<sup>7</sup>, d) SCHULT<sup>8</sup>, e) GRUBER<sup>9</sup>, f) DAY<sup>17</sup>, g) diese Arbeit: Quarz, h) diese Arbeit: LiF (vgl. Abschn. II).

## II. Das Spektrometer

### a) Aufbau

Abb. 4 zeigt den Aufbau des Spektrometers. Ein Rahmen, der in einem Bleipanzern den Sollerkollimator und den Detektor sowie ein Gegengewicht aus Betonziegeln trägt, ist drehbar in einem Kegelrollenlager gelagert. Dessen Rollenkranz ist mit einer senkrechten Welle fest verbunden, die den Kristalltisch trägt. Eine Drehung des Kollimatorrahmens erzwingt daher eine Drehung des Kristalls um den halben Winkel, so daß der Kollimator für jeden Reflexionswinkel des Kristalls in Durchlaßstellung steht. Alle Teile des Kegelrollenlagers, welches das etwa 700 kg betragende Gewicht der Bleiabschirmung aufnehmen und die Abrollbedingung streng erfüllen muß, sind aus RUS-Stahl ausgeführt und präzisionsgeläppt. Auf einem frei vor dem Spektrometer stehenden Tisch ist in 50 cm Abstand vom Kristall die Quelle, in einer Bleiabschirmung justierbar und auf einem Wagen zur Korrektur des Fokalabstandes in Strahlrichtung verschiebbar, angeordnet. Sie ist

<sup>16</sup> Y. CAUCHOIS, T. J. TIEDEMA u. W. G. BURGERS, Acta Cryst. 3, 372 [1950].

<sup>17</sup> P. P. DAY, Phys. Rev. 97, 689 [1953].

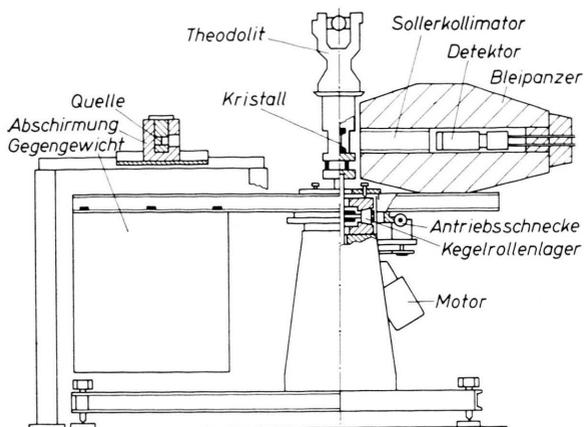


Abb. 4. Aufbau des Spektrometers.

eine 0,1 mm breite, 0,1 bis 0,5 mm tiefe und 25 mm hohe Schicht der zu untersuchenden radioaktiven Substanz.

Die im Kristall reflektierte Strahlung durchsetzt den Sollerkollimator; er besteht aus 14 Bleiplatten mit den Abmessungen  $200 \times 60 \times 1 \text{ mm}^3$ , die mit Abständen von 1,5 mm an der Eintrittsöffnung und 2,4 mm an der Rückseite in einem Stahlrahmen verschraubt sind. Die maximale Durchlässigkeit für die reflektierte Strahlung beträgt 60%, bei Winkeln unter  $23^\circ$  beginnt der Kollimator auch die direkte Strahlung durchzulassen. Der Detektor ist ein Szintillationskristall ( $50 \text{ mm } \phi \times 10 \text{ mm NaJ-Tl}$ ) auf einem Photomultiplier. Die Impulse werden in der üblichen Weise verstärkt, mit einem Zählgerät gezählt oder über ein *counting-rate-meter* mit einem Schreiber registriert. Durch die Verwendung eines Einkanal-Impulshöhendiskriminators kann zwischen Reflexen verschiedener Ordnung unterschieden und der Untergrund wesentlich herabgesetzt werden.

Zur Einstellung des Reflexionswinkels wird über eine Schnecke und ein Schneckenrad der Kollimatorrahmen, und dadurch mit der halben Winkelgeschwindigkeit auch der Kristall, gedreht, und zwar zur automatischen Registrierung von einem 60 Watt-Elektromotor über ein stufenlos regelbares Getriebe, zur Einzelmessung mit der Hand. Die Winkel werden mit einem mit dem Kristalltisch starr verbundenen Theodoliten bezüglich eines raumfesten Fadenkreuzes gemessen. Da dieses in die Brennebene einer Linse und damit optisch in unendliche Entfernung gelegt wurde, beeinflusst eine Parallaxe zwischen Theodolit- und Spektrometerachse die Genauigkeit der Winkelmessung nicht, diese ist nur durch den Teilkreis- und Ablesefehler des Theodoliten zu  $0,4''$  begrenzt.

b) Kristall

Der Kern des Spektrometers ist der Kristall. Zu Justierzwecken wurde das Instrument mit einem elastisch gebogenen, 0,3 mm dicken Quarzkristall ausgerüstet, mit (110) als reflektierender Netzebenenschar. Die Biegung erfolgte zwischen den zylindrisch gefrästen

und geläpften Innenflächen zweier Stahlblöcke, den Strahlendurchtritt gestattet ein Fenster von 35 mm  $\phi$ . Das Reflexionsvermögen des Quarzkristalls ist wegen seiner schwachen Mosaikstruktur und der geringen, durch die Bruchgrenze gegebenen Dicke sehr klein. Zur Erzielung höherer Lichtstärke mußte das Spektrometer mit einem plastisch gebogenen Kristall ausgerüstet werden.

Unerlässlich war eine Prüfung der zu biegenden Kristalle auf Güte und Einheitlichkeit. Sie erfolgte röntgenoptisch mit einer von GUINIER und TENNEVIN<sup>18</sup> angegebenen Anordnung (vgl. Abb. 5 a). Aus einem Spalt fällt kontinuierliche RÖNTGEN-Strahlung auf den Kristall. An jeder Stelle erfüllt eine andere Wellenlänge die BRAGGSche Beziehung, die reflektierte Strahlung wird aus Symmetriegründen in gleicher Entfernung hinter dem Kristall strichförmig fokussiert und dort mit einem RÖNTGEN-Film aufgefangen. Kristallbereiche mit unterschiedlicher Orientierung entwerfen auf dem Film seitlich verschobene „Bilder“ des Spaltes. Mit den in Abb. 5 angegebenen Dimensionen konnten noch Orientierungsunterschiede von  $20''$  aufgelöst werden. Der Vorteil der Methode ist, daß sie die Beurteilung des Kristalls über die gesamte Fläche ermöglicht. Wie die Prüfung ergab, zeigten fast alle untersuchten Kristalle eine Grobstruktur (evtl. Verzweigungsstruktur), bei der makroskopische Bereiche um teilweise beträchtliche Winkel (bis zu  $1^\circ$ ) gegeneinander verdreht sind. Sie ist von der wahren Mosaikstruktur, die (Abb. 2) das integrale Reflexionsvermögen bestimmt, zu unterscheiden. Nur falls der Kristall ein einheitliches, nicht aufgespaltenes Bild des Spaltes entwarf, führte die ebenfalls durchgeführte Bestimmung der wahren Mosaikverteilungsbreite aus der *rocking curve* zweier identischer Kristallscheiben zu einem eindeutigen Resultat.

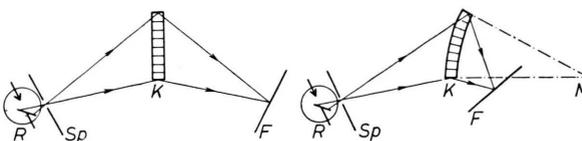


Abb. 5. Prinzip der Anordnung zur Prüfung ebener (a) und gebogener (b) Kristalle. R RÖNTGEN-Röhre, Sp Spalt, K Kristall, F RÖNTGEN-Film. Spaltbreite 0,1 mm. Entfernung Sp-K 100 cm. Winkel stark übertrieben dargestellt.

Wie Abb. 5 b zeigt, läßt sich die GUINIER-Anordnung auch zur Beurteilung der Fokussierungseigenschaften gebogener Kristalle verwenden. Aus dem Strahlengang, der dem an einem Hohlspiegel analog ist, folgt zwischen dem Spaltabstand  $g$ , dem Bildabstand  $b$  und dem Krümmungsradius  $r$  die Beziehung

$$1/b = 1/g + 2/r. \tag{4}$$

Die Abb. 6 a – d \* zeigen einige Resultate der Prüfung an ebenen Scheiben von Si-, Al-, NaCl- und LiF-Kristal-

<sup>18</sup> A. GUINIER u. J. TENNEVIN, Progr. Met. Phys. 2, 133 [1949].  
\* Abb. 6 a – f auf Tafel S. 734 a.

len<sup>19</sup>, die nach Abb. 2 zur Spektrometrie im niederenergetischen Bereich in Frage kommen und sich alle plastisch biegen lassen. Die zur Verfügung stehenden, aus der Schmelze gezogenen Al- und auch NaCl-Kristalle erwiesen sich wegen ihrer Grobstruktur als unbrauchbar. Bessere Resultate dürften mit Al-Kristallen, die nach der *strain-anneal*-Methode<sup>16</sup> hergestellt sind, zu erwarten sein. Die Verwendung der Si-Scheiben, die sehr einheitlich waren und deren Mosaikspread zu 6'' gemessen wurde, scheiterte an den Schwierigkeiten der plastischen Biegung, die Temperaturen von 1000 °C verlangt<sup>20</sup>. Die deshalb notwendige Verwendung zweier fester Biegeformen hat eine, insbesondere bei Kreis-scheiben, anfänglich sehr inhomogene Biegung zur Folge, die sich später nicht mehr ausgleichen läßt. Außerdem stört, daß alle für die Biegeformen in Betracht kommenden Materialien bei dieser Temperatur mit Si reagieren.

Als verwendbar und verhältnismäßig einheitlich erwiesen sich die besten Exemplare einer Auswahl von LiF-Scheiben. Zur Herstellung gekrümmter Monochromatoren wurden die 40 × 40 mm<sup>2</sup> großen Scheiben nach RIGGS<sup>21</sup> durch einstündiges Tempern bei 450 °C plastisch gemacht und dann bei Zimmertemperatur über eine konvexe Stahlform gebogen. Vorsichtiges Andrücken mit den von der Mitte nach den Seiten abrollenden Fingern ergab die gleichmäßigste Biegung. Das Resultat des GUINIER-Tests an einem gebogenen, 1,5 mm dicken LiF-Kristall zeigt Abb. 6 e. Die sichtbaren Seitenreflexe verschwanden beim Abdecken der Kristallkanten. Zum Vergleich zeigt Abb. 6 f die Aufnahme eines elastisch gebogenen Quarzkristalls.

### c) Eichung

Nach sorgfältiger Justierung wurde mit einer 0,1 mm breiten Quelle für den besten LiF-Monochromator die Linienbreite zu 5,0', für den Quarzkristall zu 1,1' gemessen. Aus der Geometrie errechnet sich bei kleinen Winkeln eine Linienbreite von 45''; die Verbreiterung dürfte beim Quarz auf unvollkommene Einspannung des Kristalls oder auf eine Durchbiegung der Quelle, beim LiF auf die vorhandene und durch die plastische Verformung vermehrte Grob- und Mosaikstruktur zurückzuführen sein. Die Gitterkonstanten der verwendeten Netzebenen des LiF (200) und des Quarzes (110) wurden mit Hilfe von  $\gamma$ -Linien bekannter Wellenlänge bei optimaler Fokussierung zu

$$2 d_{(200)\text{LiF}} = (4,0065 \pm 0,001) \text{ kXE},$$

$$2 d_{(110)\text{Quarz}} = (4,8960 \pm 0,0007) \text{ kXE}$$

gemessen. Das zur Energie  $E$  proportionale Auflösungsvermögen  $\Delta E/E$  des Spektrometers beträgt bei 50 keV

<sup>19</sup> Für die Überlassung von Probekristallen sei der Firma Wacker-Chemie, München (Si), dem Institut für Kernforschung der Polnischen Akademie der Wissenschaften, Warschau (Al) und Herrn Prof. Dr. F. ASSELMAYER (NaCl) besonders gedankt. Herstellung und Bearbeitung der LiF-Kristalle durch die Fa. Dr. Karl Korth, Kiel.

<sup>20</sup> P. HAASEN u. A. SEEGER, in W. SCHOTTKY, Halbleiterprobleme IV, 68 [1958].

2,5% mit dem LiF-, 0,5% mit dem Quarzkristall. Zur Bestimmung des Reflexionsvermögens wurden die mit Hilfe einer RÖNTGEN-Röhre zu Fluoreszenz angeregten  $K_{\alpha}$ -Linien der Elemente Br, Mo, Ag, Ba, Sm und Tm verwendet. Verglichen wurden die Zählraten im Nullstrahl und im Maximum des Reflexes 1. Ordnung. Das mit den notwendigen Korrekturen versehene Meßergebnis zeigt Abb. 7 a, zusammen mit dem theoretischen Verlauf des Reflexionsvermögens, das sich aus den angegebenen Formeln errechnet, wenn man die aus dem GUINIER-Test geschätzte Mosaikverteilungsbreite von 3' zugrunde legt. Der Quarzkristall hat ein etwa 20-mal kleineres Reflexionsvermögen. Abb. 7 b zeigt den aus dem Reflexionsvermögen, der Absorption im Kristall, dem Raumwinkel und der Kollimatordurchlässigkeit berechneten Verlauf der Lichtstärke für das mit dem LiF-Monochromator ausgerüstete Spektrometer.

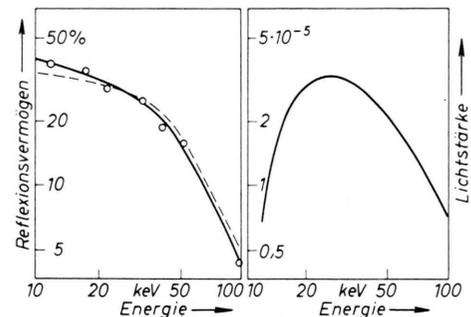


Abb. 7. Reflexionsvermögen des LiF-Monochromators (a) und Lichtstärke des mit ihm ausgerüsteten Spektrometers (b). Die gestrichelte Kurve in (a) gibt den berechneten Verlauf des Reflexionsvermögens an.

## III. Messungen

Um die hohe Empfindlichkeit des Spektrometers im niederenergetischen Bereich auszunutzen, wurde das bereits mehrfach untersuchte<sup>22-25</sup>, aber im Bereich unter 50 keV noch ungenügend bekannte  $\gamma$ -Spektrum gemessen, das  $W^{182}$  nach dem  $\beta$ -Zerfall von  $Ta^{182}$  aussendet. Als Quelle diente ein Tantaldraht (0,1 mm  $\phi$  × 25 mm), der im FRM aktiviert worden war. Zur Zeit der Messung betrug die Aktivität 2 mC; die durch doppelten Neutroneneinfang entstandene Aktivität von  $Ta^{183}$  war abgeklungen.

<sup>21</sup> F. B. RIGGS JR., Rev. Sci. Instrum. **33**, 874 [1962].

<sup>22</sup> J. J. MURRAY, F. BOEHM, P. MARMIER u. J. W. M. DUMOND, Phys. Rev. **97**, 1007 [1955].

<sup>23</sup> H. RYDE u. Z. SUJKOWSKI, Ark. Fys. **20**, 298 [1961].

<sup>24</sup> W. F. EDWARDS, F. BOEHM, J. ROGERS u. E. J. SEPPI, erscheint in Nucl. Phys.

<sup>25</sup> H. DANIEL, J. HÜFNER, T. LORENZ, O. W. B. SCHULT u. U. GRUBER, Nucl. Phys. **56**, 147 [1964].

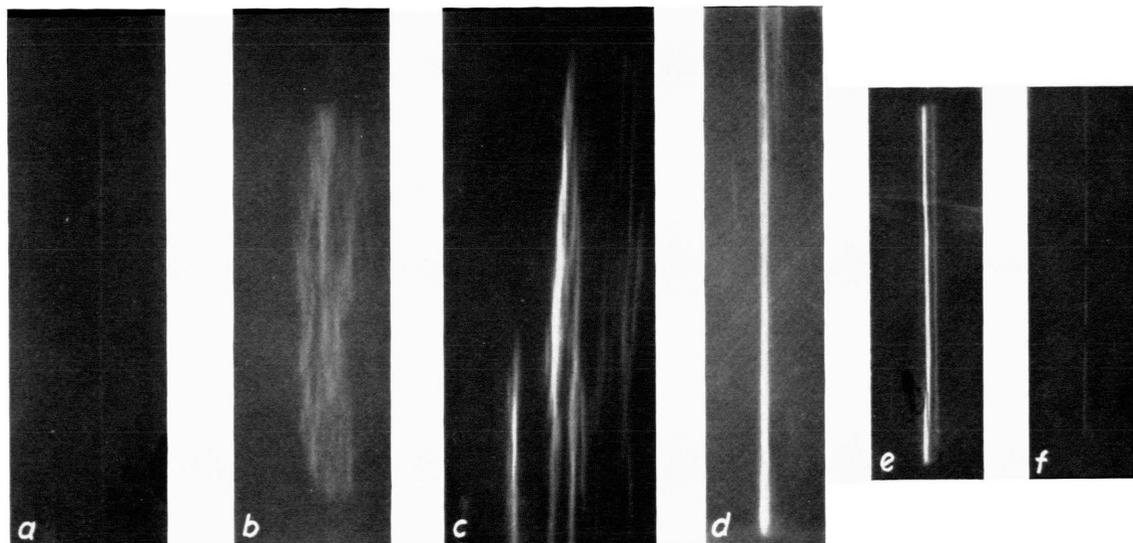


Abb. 6. Mit der in Abb. 5 gezeigten Anordnung hergestellte Aufnahmen der Abbildung eines Strichfokus durch einen ebenen Si- (a), Al- (b), NaCl- (c) und LiF-Kristall (d) sowie einen gebogenen LiF- (e) und Quarzkristall (f). Im letzten Bild ist die Kristallöffnung von drei waagerechten Stegen unterbrochen.



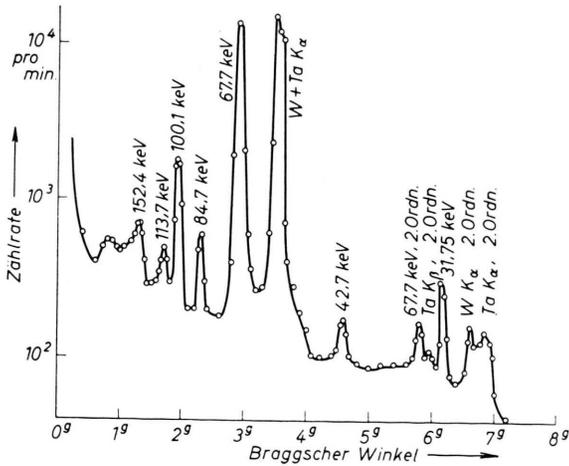


Abb. 8. Spektrum der  $\gamma$ - und RÖNTGEN-Linien von Ta<sup>182</sup> zwischen 20 und 200 keV.

Das Spektrum zwischen 20 und 200 keV zeigt Abb. 8. Die Reflexe der  $\gamma$ -Linien rechts und links vom Nullstrahl wurden mehrfach punktweise ausgemessen. Zur Intensitätsbestimmung wurden die Flächen der Linien ermittelt, bezüglich des Reflexionsvermögens des LiF-Kristalls, der Absorption in der Quelle und im Kristall sowie des *peak zu total*-Verhältnisses des Szintillationszählers korrigiert, und verglichen. Die Ergebnisse zeigt Tab. 1 zusammen mit den Werten anderer Autoren. Die letzte Spalte gibt die absoluten Intensitäten in Quanten pro 100 Zerfälle, die sich aus dem bekannten Zerfallsschema (siehe unten) durch Normierung der Summe aller Übergänge in den Grundzustand berechnen lassen.

Die Intensitäten der Linien bei 100, 84,8, 67,7 und 42,7 keV stimmen mit den Vergleichswerten überein. Die Linie bei 31,75 keV wurde bisher noch nicht beobachtet; dagegen sind L-Konversionslinien

Energie (keV)	$I_\gamma$ , rel. diese Arbeit	$I_\gamma$ , rel. EDWARDS <sup>24</sup>	$I_\gamma$ , rel. DANIEL <sup>25</sup>	$I_\gamma$ , abs. 0/0
100,1	100 ± 15	100	100 ± 5,8	14,3 ± 2
84,8	20,5 ± 3	18,8 ± 1	20,8 ± 1,4	2,3 ± 0,4
67,7	305 ± 60	293 ± 15	296 ± 14	43 ± 9
42,7	1,6 ± 0,3	1,73 ± 0,09	—	0,22 ± 0,4
31,75 ± 0,03	6,3 ± 1,0	—	—	0,90 ± 0,15

Tab. 1. Intensitäten der gemessenen  $\gamma$ -Linien von Ta<sup>182</sup>. Spalten 2–4: Vergleich der relativen Intensitäten mit den Meßwerten anderer Autoren. Spalte 5: die gemittelten und nach DANIEL u. a. normierten absoluten Intensitäten in Quanten pro 100 Zerfälle.

eines 31 keV-Überganges bekannt<sup>26, 27</sup>. Eine von MURRAY u. a.<sup>22</sup> berichtete Linie bei 33,36 keV konnte nicht bestätigt werden. Da jedoch an dieser Stelle die Reflexe 2. Ordnung der 67,7 keV  $\gamma$ -Linie und der  $K_\beta$ -RÖNTGEN-Linien auftreten, die durch Impulsdiskriminierung wegen des *escape-peaks* des NaJ-Zählers nur unvollkommen unterdrückt werden können, läßt sich aus den Messungen lediglich eine obere Intensitätsgrenze von  $I_{\max} = 0,3$  Quanten pro 100 Zerfälle für eine solche Linie angeben.

#### IV. Diskussion

Das Zerfallsschema des Ta<sup>182</sup> ist experimentell und theoretisch eingehend erforscht. Eine Darstellung mit umfassenden neueren Ergebnissen und Vergleichen mit denen anderer Autoren findet sich bei DANIEL u. a.<sup>25</sup>. Die 42,7 keV- und die 31,7 keV-Linie, die dort noch nicht berücksichtigt sind, lassen sich wie folgt in das Niveauschema einordnen (vgl. Abb. 9).

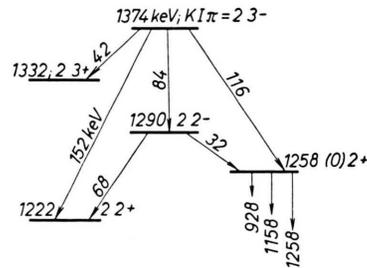


Abb. 9. Ausschnitt aus dem Niveauschema von W<sup>182</sup> nach DANIEL u. a.<sup>25</sup>. Im Text nicht erwähnte Niveaus und Übergänge sind weggelassen.

Die 42,7 keV-Linie paßt energetisch zwischen den 1374 keV- und den 1332 keV-Zustand mit  $(K, I, \pi) = (2, 3, -)$  und  $(2, 3, +)$ . Eine mit den

<sup>26</sup> U. S. GYODZDEV, L. J. RUSINOV u. J. L. KHASOV, Izv. Akad. Nauk SSSR, Ser. Fiz. **24**, 1444 [1960].

<sup>27</sup> B. HARMATZ, T. H. HANDLEY u. J. W. MIHELICH, Phys. Rev. **123**, 1758 [1961].

Daten aus DANIEL u. a. aufgestellte Intensitätsbilanz der die Niveaus be- und entvölkernden Übergänge zeigt, daß die 42,7 keV-Linie ein reiner E1-Übergang sein muß. Das Verhältnis der reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten der 42 keV- und 152 keV-Linie beträgt

$$B(E1, 42 \text{ keV})/B(E1, 152 \text{ keV}) = 1,6 \pm 0,3$$

und deckt sich mit dem nach den Regeln von ALAGA<sup>28</sup> berechneten Wert 1,4.

Die 31,7 keV-Linie ist als Übergang vom 1290 keV- zum 1258 keV-Niveau anzusehen. Die gemessene Energie ( $31,75 \pm 0,03$ ) keV stimmt mit der Energiedifferenz der 116 keV- und der 84 keV-Linie, die nach SEPPI u. a.<sup>15</sup> ( $31,728 \pm 0,003$ ) keV beträgt, überein. Diese Übereinstimmung stützt auch die in DANIEL u. a.<sup>25</sup> abweichend von MURRAY<sup>22</sup> und BASHANDY<sup>29</sup> getroffene Einordnung der 116 keV-Linie. Als Multipolarität des 32,7 keV-Übergangs kommt aus Intensitätsgründen ebenfalls nur E1 in Frage. Damit wird die Annahme positiver Parität des 1258 keV-Zustandes bestätigt. Für die in<sup>25</sup> aus Intensitätsbilanzen gewonnenen Intensitäten der zu den beteiligten Niveaus führenden  $\beta$ -Übergänge ergeben sich bei Berücksichtigung unserer Linie neue Werte: für den zum 1290 keV-Niveau führenden Zweig  $1,3 \pm 0,6\%$  statt  $3,6 \pm 0,4\%$ , für den Zweig zum 1258 keV-Niveau  $44,0 \pm 4\%$  statt  $41,7 \pm 3,5\%$ . Mit den aus der FERMI-Zerlegung des  $\beta$ -Spektrums gewonnenen Intensitäten sind auch die neuen Werte verträglich, sie liegen außerdem näher bei den Resultaten von HANSEN u. a.<sup>30</sup>.

Der  $K$ -Wert und die innere Struktur des 1258 keV-Zustandes sind noch nicht eindeutig geklärt; das Niveau kann keiner der drei bekannten Rotationsbanden, die auf dem Grundzustand, einem  $\gamma$ -Schwingungszustand und einem  $K=2$ -Zustand aufbauen, zugeordnet werden. Ein Vergleich der reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten der drei zur Grundzustandsbande führenden Linien (vgl. Tab. 2) spricht für  $K=0$  oder, falls dem 1158 keV-Übergang ein M1-Anteil beigemischt ist<sup>23</sup>, für  $K=1$ .  $K=0$  würde der plausiblen und mehrfach vorgeschlagenen<sup>26, 27</sup> Deutung als zweites Niveau einer Rotationsbande, die auf einem  $\beta$ -Schwingungszu-

Energie (keV)	$B(E2)$ exp.	$B(E2)$ theor.		
		$K=0$	$K=1$	$K=2$
1258	0,70	0,70	0,88	0,70
1158	1,00	1,00	0,31	1,00
928	1,25	1,80	1,00	0,05

Tab. 2. Relative reduzierte Übergangswahrscheinlichkeiten der Übergänge vom 1258 keV-Niveau zur Grundbande. Spalte 2: experimentelle Werte nach DANIEL<sup>25</sup>, Spalten 3–5: Theoretische Werte für verschiedene  $K$ -Werte des 1258 keV-Niveaus.

stand aufbaut, entsprechen. Ein 1443 keV-Niveau und ein bisher nur beim Zerfall des  $\text{Re}^{182}$  beobachtetes Niveau<sup>27</sup> bei 1757 keV könnten ebenfalls dieser Bande zugeordnet werden.

In diesem Fall wären die 32 keV- und die 116 keV-Linie einfach  $K$ -verboten. Ein Vergleich ihrer reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten mit denen der 68 keV- und 158 keV-Linie liefert

$$B(E1, 31 \text{ keV})/B(E1, 68 \text{ keV}) = 0,20 \pm 0,5,$$

$$B(E1, 116 \text{ keV})/B(E1, 152 \text{ keV}) = 0,156 \pm 0,015$$

und damit unerwartet hohe, mit einem  $K$ -Verbot schwer verträgliche Werte. Sie ließen sich erklären durch Annahme einer Konfigurationsmischung des 1258 keV-Zustandes aus  $(K, I, \pi) = (0, 2, +)$  und  $(2, 2, +)$ . Eine Mischung der Wellenfunktionen  $K=2$  und  $K=0$  im Verhältnis 0,40 : 0,91 würde für die beiden angegebenen Verzweungsverhältnisse theoretische Werte von 0,16 ergeben, in Einklang mit dem Befund. (Mit einer Beimischung  $K=1$  ließe sich Übereinstimmung nicht erreichen.) Dabei ist angenommen, daß der 1258 keV- und der 1220 keV-Zustand die gleiche innere Konfiguration haben und deshalb die Intensitätsregeln nach ALAGA<sup>28</sup> anwendbar sind. Über die Gültigkeit dieser Annahme kann auf Grund der vorliegenden Daten nicht entschieden werden.

Meinem verehrten Lehrer, Herrn Prof. Dr. H. MAIER-LEIBNITZ, bin ich für die Ermöglichung und Förderung dieser Arbeit zu tiefem Dank verpflichtet. Herrn Dr. O. SCHULT sei für wertvolle Diskussionen und Ratschläge, Herrn cand. phys. J. KRIECHERBAUER, der die mechanische Konstruktion des Spektrometers besorgte, für seine Mitarbeit herzlich gedankt.

<sup>28</sup> C. ALAGA, K. ALDER, A. BOHR u. B. R. MOTTelson, Kgl. Danske Videnskab. Selskab, Mat.-Fys. Medd. **29**, Nr. 9 [1955].

<sup>29</sup> E. BASHANDY, A. H. EL-FARRASH u. M. S. EL-NESEr, Nucl. Phys. **52**, 61 [1964].

<sup>30</sup> P. G. HANSEN, H. L. NIELSEN u. K. WILSKY, Nucl. Phys. **54**, 657 [1964].