

Aus dem II. Institut für Experimentalphysik der Universität Hamburg

Das magnetische Moment des 2,083 MeV-Zwei-Protonen-Niveaus des gerade-gerade-Kerns Ce^{140}

Von

H. J. KÖRNER, E. GERDAU, C. GÜNTHER, K. AUERBACH,
G. MIELKEN, G. STRUBE und E. BODENSTEDT

Mit 7 Figuren im Text

(Eingegangen am 3. Dezember 1962)

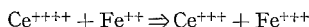
The nuclear g -factor of the 2.083 MeV-state of Ce^{140} has been determined as:

$$g = 1.11 \pm 0.04$$

This value suggests the interpretation of the level as the $(g7/2, d5/2)_4$ two proton shell model configuration.

The investigation implies an integral measurement as well as a time dependent differential measurement (spin rotation method) of the rotation of the 329 keV–487 keV $\gamma\gamma$ -angular correlation in strong external magnetic fields. Liquid sources of lanthanum nitrate solved in 3n HNO_3 were used in these experiments. Some cerium (IV)nitrate was added to make sure that the 4f-electronic shell remained empty after the β^- -decay. This prevented paramagnetic effects.

Additional runs were performed without adding cerium (IV)nitrate and finally by using liquid sources of lanthanum chloride solved in 2n HCl with some iron (II)-chloride added. It was expected that the Fe^{++} ions would reduce the primarily formed Ce^{++++} ions into the Ce^{+++} state. The Ce^{+++} shell is paramagnetic and enlarges the effective magnetic field at the position of the nucleus by about 36%. As no definitely faster rotation could be observed, one has to conclude that the ion reaction



takes more than about 10^{-8} s.

The half life of the 2.083 MeV state has been redetermined as

$$T_{\frac{1}{2}} = (3.41 \pm 0.04) \cdot 10^{-9} \text{ s.}$$

Differential measurements of the angular correlation of the 329 keV–487 keV cascade as a function of the time delay showed that perturbations by internal fields were very small. The coefficients A_2 and A_4 of the angular correlation and the attenuation parameter λ_2 were determined from measurements with sources of the first type as:

$$A_2 = -0.105 \pm 0.003 \quad A_4 = -0.001 \pm 0.002$$

and

$$\lambda_2 = (0.0065 \pm 0.0040) \cdot 10^9 \text{ s}^{-1} = (0.032 \pm 0.020) \cdot \lambda$$

A comparison with the theoretical coefficients of a (3- 4- 2)-cascade shows that the multipolarity of the 329 keV radiation is a mixture of 99.83% $M1$ and $(0.17 \pm 0.03)\%$ $E2$.

1. Einführung

Ce¹⁴⁰ ist ein gerade-gerade-Kern mit einer magischen Neutronenzahl ($N=82$). Er gehört deshalb zu den sphärischen Kernen, und das erste angeregte Niveau ist ein 2^+ -Vibrationsniveau. Es liegt bei 1,596 MeV (s. Fig. 1). Die Anregungsenergien der 2^+ -Vibrationsniveaus des Ce¹⁴⁰ und aller benachbarten gerade-gerade-Kerne mit $N=82$ von

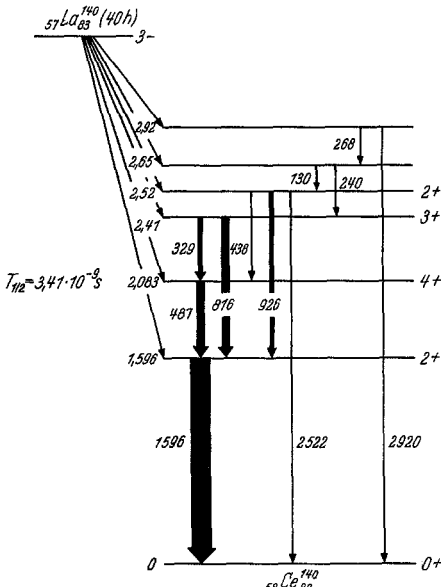


Fig. 1

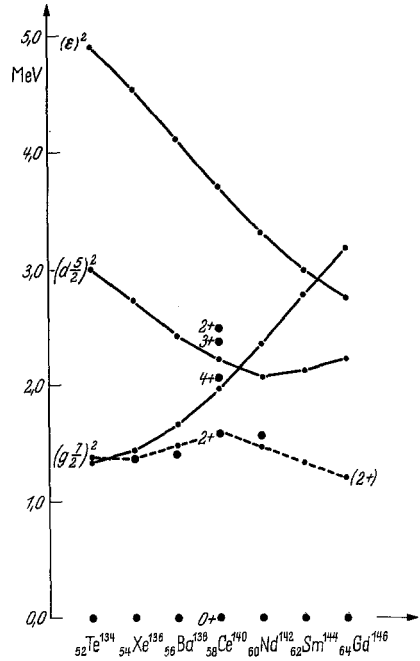


Fig. 2

Fig. 1. Zerfallsschema des Lanthan 140

Fig. 2. Lage der 2^+ -Vibrations-Niveaus und der tiefsten Zwei-Protonen-Terme der gg -Kerne mit der magischen Neutronenzahl $N=82$ nach Berechnungen von KISSLINGER und SORENSEN¹. Die dick eingetragenen Punkte sind die experimentell bekannten Daten für die 2^+ -Vibrations-Niveaus sowie für die tiefsten angeregten Niveaus von Ce¹⁴⁰

Te¹²⁴ bis Gd¹⁴⁶ wurden von KISSLINGER und SORENSEN¹ theoretisch berechnet unter Verwendung der Paarungskorrelationen. Für den Paarungsparameter

$$G = 23/A$$

stimmen die berechneten Anregungsenergien gut mit den beobachteten Werten überein (s. Fig. 2).

Wegen der besonders großen Bindungsenergie der abgeschlossenen Neutronenschale müssen die Niveaus dicht oberhalb der 2^+ -Vibrations-

¹ KISSLINGER, L. S., and R. A. SORENSEN: Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk **32**, No. 9 (1960).

anregung ausschließlich Zwei-Protonen-Anregungen sein. Nach den Berechnungen von KISSLINGER und SORENSEN¹ kommen beim Ce¹⁴⁰ nur Konfigurationen von Protonen aus der $g7/2$ - und der $d5/2$ -Schale in Frage.

Die tiefsten Niveaus des Ce¹⁴⁰ werden im β^- -Zerfall des La¹⁴⁰ (40 h) erreicht. Das Zerfallsschema ist schon lange bekannt (s. Fig. 1). Kürzlich wurde von CURRIE² gefunden, daß das $4+$ -Niveau bei 2,083 MeV eine Halbwertszeit von $3,44 \cdot 10^{-9}$ s hat. Das $4+$ -Niveau zerfällt durch einen γ -Übergang auf das $2+$ -Vibrationsniveau. Die geringe Übergangswahrscheinlichkeit liefert einen Hinweis dafür, daß beide Niveaus eine sehr verschiedene Struktur haben müssen. Die beobachtete lange Lebensdauer ist damit ein Argument für die Interpretation als Zweiteilchen-Anregung. Mit Sicherheit schließt sie die Interpretation als Zweiphononen-Anregung aus; außerdem erwartet man die Zweiphononen-Anregung erst bei wesentlich höheren Energien.

Die Anregungsenergie des $4+$ -Niveaus liegt gerade zwischen den Werten, die KISSLINGER und SORENSEN¹ für die $(g7/2)^2$ - und $(d5/2)^2$ -Konfigurationen für Ce¹⁴⁰ berechneten (s. Fig. 2). Am wahrscheinlichsten erscheint deshalb die Erklärung des Niveaus als $(g7/2, d5/2)_4$ -Konfiguration. Die Energieunterschiede zu den theoretischen Werten der $(g7/2, g7/2)_4$ - und der $(d5/2, d5/2)_4$ -Konfiguration sind allerdings so gering, daß man diese Möglichkeiten nicht sicher ausschließen kann. Eine theoretische Berechnung der g -Faktoren nach dem jj -Kopplungsschema ergibt für diese drei möglichen Konfigurationen erheblich voneinander abweichende Werte. Wenn man von den Schmidt-Werten für die g -Faktoren der Einzelteilchen ausgeht, erhält man für die Konfigurationen:

$$(g7/2, g7/2)_4: g = +0,49$$

$$(g7/2, d5/2)_4: g = +0,95$$

$$(d5/2, d5/2)_4: g = +1,91.$$

Es erscheint lohnend, durch eine experimentelle Untersuchung des g -Faktors zu versuchen, zwischen diesen drei Fällen eine Entscheidung zu treffen.

Der g -Faktor läßt sich durch eine Messung der Rotation der 329 keV—487 keV-Winkelkorrelation in äußeren Magnetfeldern bestimmen. Folgende Umstände erschweren diese Untersuchung:

Einmal stören starke Beimischungen prompter Kaskaden. Eine genaue Analyse dieser Beimischungen ist schwierig.

Dann sollte das effektive Magnetfeld am Kernort durch den Paramagnetismus der Atomhülle des Cers um etwa 36%^{3,4} erhöht sein. Die

² CURRIE, W.M.: Nuclear Phys. **32**, 574 (1962).

³ MANNING, G., and J.D. ROGERS: Nuclear Phys. **15**, 166 (1960).

⁴ DONNER, W.: Diplomarbeit Hamburg 1960.

theoretisch berechnete Korrektur für den Paramagnetismus ist jedoch nur dann zuverlässig, wenn nach dem β^- -Zerfall des Lanthans die Atomhülle des Tochterkerns den Grundzustand des Ce^{+++} in einer Zeit erreicht, die klein ist gegenüber der Lebensdauer des $4f$ -Niveaus.

Eine Untersuchung der störenden Kaskaden ergab, daß beim üblichen Verfahren der Analyse der Koinzidenzspektren erhebliche systematische Fehler auftreten können. Wir konnten diese Schwierigkeit umgehen, indem wir folgendes Verfahren anwendeten: Wir beobachteten die Beeinflussung der integralen Winkelkorrelation der gemischten Kaskade durch ein schwaches und ein sehr starkes Magnetfeld. Es gelingt dann durch einen Mehrparameterangleich den g -Faktor zu bestimmen, ohne den prozentualen Anteil der prompten Beimischung zu kennen.

Eine nähere Prüfung der zu erwartenden Effekte des Paramagnetismus ergab folgende interessante Konsequenzen: Der Paramagnetismus wird wie bei den übrigen Seltenen Erden durch die unvollständig aufgefüllte $4f$ -Elektronenschale hervorgerufen. Die Atomhülle des neutralen Cers wie die des dreiwertigen Ions enthält ein Elektron in der $4f$ -Schale. Das radioaktive Mutterisotop La^{140} hat dagegen als erstes Element der Seltenen Erden eine unbesetzte $4f$ -Schale und ist deshalb nicht paramagnetisch. Verwendet man als radioaktive Quelle La^{+++} -Ionen in wäßriger Lösung, so wird nach dem β^- -Zerfall primär die Atomhülle eines vierfach ionisierten Cers mit ebenfalls unbesetzter $4f$ -Schale entstehen; denn das vom Kern emittierte β^- -Teilchen durchdringt die eigene Atomhülle mit großer Wahrscheinlichkeit ohne weitere Ionisierung. Aus der Chemie ist bekannt, daß stabile Verbindungen des vierwertigen Cers existieren, und durch Suszeptibilitätsmessungen⁵ wurde nachgewiesen, daß das vierwertige Cer nicht paramagnetisch ist, d. h. daß in der Vierwertigkeitsstufe die $4f$ -Elektronenschale tatsächlich leer ist. Cer ist das einzige Element der Seltenen Erden, bei dem das vierwertige Ion auch in wäßrigen Lösungen stabil ist, vorausgesetzt, daß hinreichend starke Oxydationsmittel wie Salpetersäure oder Schwefelsäure anwesend sind. Eine zuverlässige Messung des g -Faktors ohne Störung durch Paramagnetismus sollte deshalb in der Weise möglich sein, daß man flüssige Quellen von La^{+++} in salpetersaurer Lösung verwendet. Um die Unsicherheit des chemischen Verhaltens der beim radioaktiven Zerfall entstehenden unwägbaren Mengen an Ce^{++++} zu vermeiden, gibt man inaktives Cer in Form von Ce^{++++} -Ionen zu.

Dann läßt sich ein weiteres interessantes Experiment zur Untersuchung von Ionenreaktionsgeschwindigkeiten durchführen: Verwendet man die Lanthanquelle in reduzierenden Lösungen, wie z. B. Eisen(II)-salzlösung, so wird das primär gebildete Ce^{++++} zum Ce^{+++} reduziert.

⁵ Handbook of Chemistry and Physics, 43rd edit., p. 2685. Cleveland: The Chemical Rubber Publishing Co. 1961/62.

Auf Grund des Paramagnetismus erhöht sich die Larmorpräzessionsfrequenz um 36%. Dieser Effekt würde sich bei integraler Messung beobachten lassen, wenn der Reduktionsmechanismus in einer Zeit abläuft, die klein ist gegenüber der Lebensdauer des 4+-Niveaus von $3,44 \cdot 10^{-9}$ s. Bei differentieller Messung der Rotation der Winkelkorrelation (Spinrotationsmethode⁶) würde sich der zeitliche Ablauf des Reduktionsprozesses bis zu Zeiten von etwa 10^{-8} s verfolgen lassen.

2. Differentielle Messung der Winkelkorrelation der 329 keV—487 keV-Kaskade als Funktion der Verzögerungszeit

Die Winkelkorrelation der 329 keV—487 keV-Kaskade wurde von KELLY und WIEDENBECK⁷ durch eine integrale Messung zu

$$W(\theta) = 1 - (0,103 \pm 0,006) \cdot P_2 + (0,0249 \pm 0,008) \cdot P_4$$

bestimmt. Die Koeffizienten sind nicht sehr sicher, da die erhebliche Korrektur für die Beimischung der 487 keV—1596 keV-Kaskade mit systematischen Fehlern behaftet sein kann. Die Koeffizienten sind auch nicht gut mit der Spinfolge (3-4-2) der Niveaus verträglich. Bei der damaligen Untersuchung war die Lebensdauer des mittleren Niveaus noch nicht bekannt. Sie wurde von CURRIE² zu

$$T_{\frac{1}{2}} = (3,44 \pm 0,06) \cdot 10^{-9} \text{ s}$$

bestimmt.

Wir haben die Messung der Lebensdauer wiederholt. Als Detektoren verwendeten wir $1\frac{1}{2}'' \times 1''$ NaJ(Tl)-Szintillationskristalle. Fig. 3 zeigt das Impulshöhenspektrum eines unserer La¹⁴⁰-Präparate und die Einstellung der Einkanal-diskriminatoren auf die beiden Photolinien.

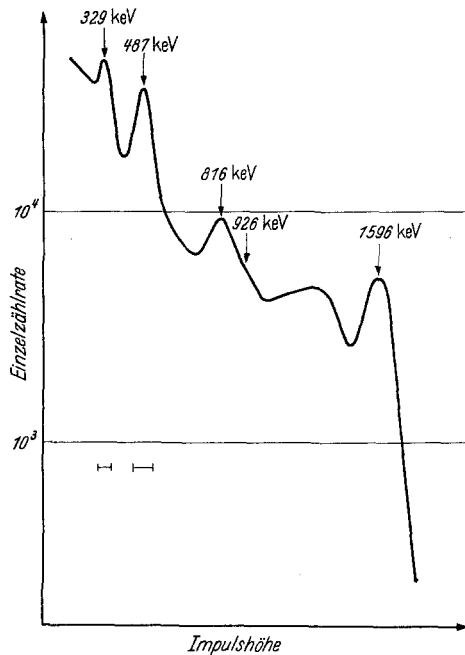


Fig. 3. Impulshöhenspektrum des Lanthan 140, aufgenommen mit einem $1\frac{1}{2}'' \times 1''$ NaJ(Tl) Szintillationskristall. Unter dem Spektrum ist die Einstellung der Einkanal-diskriminatoren auf die Photolinien bei 329 keV und 487 keV eingetragen

⁶ MATTHIAS, E., and T. LINDQVIST: Nuclear Instr. and Methods **13**, 356 (1961).

⁷ KELLY, W. H., and M. L. WIEDENBECK: Phys. Rev. **102**, 1130 (1956).

Koinzidenzen wurde mit Hilfe eines schnellen Zeit-Impulshöhen-Konverters auf einen Vielkanaldiskriminator gegeben. Das Resultat der Messung ist in Fig. 4 wiedergegeben. Die Auswertung ergibt

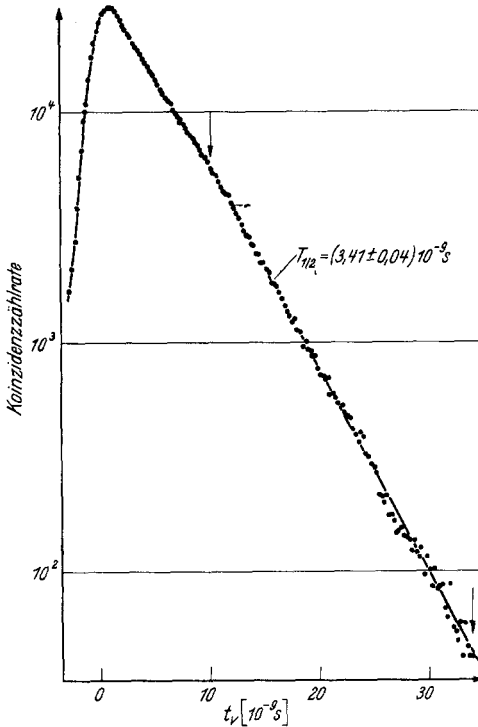


Fig. 4. Zeitspektrum der Koinzidenzen zwischen den γ -Übergängen von 329 keV und 487 keV. Zur Bestimmung der Lebensdauer wurde nur der exponentielle Abfall zwischen den beiden Pfeilen ausgewertet. Oberhalb dieses Gebiets ist die Kurve durch prompte Beimischungen deformiert. Außerdem endet dort der Linearitätsbereich des Zeit-Impulshöhen-Konverters

läuft $A_2(t_v)$ fast horizontal; d.h. die Abschwächung der Winkelkorrelation durch innere Felder muß sehr klein sein.

Der Angleich der Funktion

$$A_2(t) = A_2 \cdot e^{-\lambda_2 \cdot t}$$

an die Meßpunkte mit $t_v \geq 3,7 \cdot 10^{-9}$ s ergab

$$A_2 = -0,105 \pm 0,003^* ; \quad \lambda_2 = (0,0065 \pm 0,0040) \cdot 10^9 \text{ s}^{-1} \\ = (0,032 \pm 0,020) \cdot \lambda,$$

wo λ die Zerfallskonstante des mittleren Niveaus ist.

* Dieser Wert ist für die endlichen Öffnungswinkel der Detektoren korrigiert.

$$T_{\frac{1}{2}} = (3,41 \pm 0,04) \cdot 10^{-9} \text{ s}$$

in guter Übereinstimmung mit dem Wert von CURRIE².

Wir haben dann mit der gleichen Anordnung eine differentielle Messung der Winkelkorrelation als Funktion der Verzögerungszeit durchgeführt. Als Quelle verwendeten wir eine Lösung von Lanthan-Nitrat in 3n Salpetersäure unter Zugabe von Cer(IV)nitrat. Wir beschränkten die Messung auf die drei Winkel 90° , 135° und 180° und berechneten für jeden Kanal aus den gemessenen drei Koinzidenzzählraten die Winkelkorrelationskoeffizienten $A_2(t_v)$ und $A_4(t_v)$. Das Ergebnis ist in Fig. 5a dargestellt.

Die A_2 -Koeffizienten sind negativ. Bei kleinen Verzögerungen t_v werden die Koeffizienten durch das positive A_2 der prompten 487 keV–1596 keV-Beimischung reduziert. Für größere t_v verläuft

Der Koeffizient A_4 ist so klein, daß eine Bestimmung von λ_4 nicht sinnvoll erschien. Wir haben statt dessen unter Verwendung von $\lambda_4 \approx 0$ den Koeffizienten A_4 allein angeglichen. Das Resultat ist:

$$A_4 = -0,001 \pm 0,002^*.$$

Durch die Beschränkung der Auswertung auf die Meßpunkte mit $t_v \geq 3,7 \cdot 10^{-9}$ s werden alle prompten Beimischungen sicher ausgeschlossen. Es bleibt noch eine geringfügige Beimischung der 329 keV—487 keV—1596 keV-Dreifachkaskade. Diese dürfte jedoch die absoluten Koeffizienten der 329 keV—487 keV-Winkelkorrelation nicht beeinflussen, da sie die gleichen Koeffizienten haben sollte.

Ein Vergleich mit der integralen Messung von KELLY und WIEDENBECK⁷ ergibt für A_2 eine ausgezeichnete Übereinstimmung, während für A_4 eine merkliche Diskrepanz vorliegt. Unsere Werte sind mit

* Dieser Wert ist für die endlichen Öffnungswinkel der Detektoren korrigiert.

Fig. 5b. Differentielle Messung der 329 keV—487 keV $\gamma\gamma$ -Winkelkorrelation als Funktion der Verzögerungszeit unter Verwendung einer Quelle von Lanthanchlorid gelöst in 2n HCl unter Zugabe von Eisen(II)chlorid

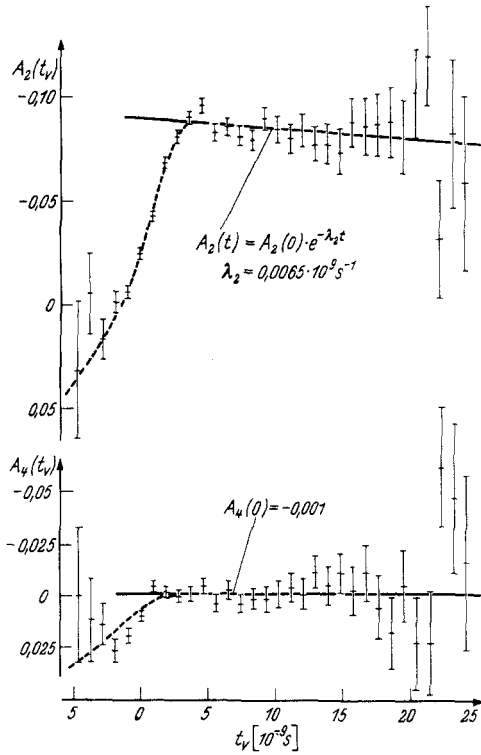
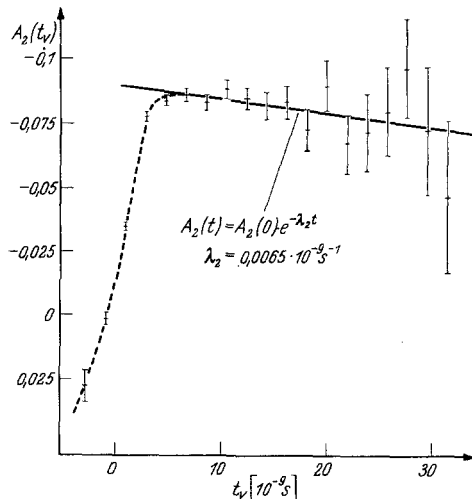


Fig. 5a. Differentielle Messung der 329 keV—487 keV $\gamma\gamma$ -Winkelkorrelation als Funktion der Verzögerungszeit unter Verwendung einer Quelle von Lanthannitrat, gelöst in 3n HNO₃ unter Zugabe von Cer(IV)nitrat



der Theorie in guter Übereinstimmung für den Mischungsparameter

$$\delta = +0,041 \pm 0,03$$

für den ersten Übergang; d.h. die 329 keV-Strahlung ist ein fast reiner $M1$ -Übergang mit einer $E2$ -Beimischung von $(1,7 \pm 0,3)\%$.

Es war interessant zu prüfen, ob in reduzierenden Lösungen die Ce^{+++} -Ionen durch ihr starkes Magnetfeld am Kernort meßbare magnetische Störungen verursachen.

Wir verwendeten für diese Untersuchung die Quelle in Form von Lanthanchlorid, das in 2n Salzsäure gelöst war, und gaben Eisen(II)-chlorid bis zur halben Sättigungskonzentration zu. Die Messung wurde auf die Winkel 90° und 180° beschränkt. Das Resultat ist in Fig. 5 b dargestellt.

Die eingetragene Kurve entspricht dem bei der vorhergehenden Messung gefundenen Abschwächungsparameter:

$$\lambda_2 = (0,0065 \pm 0,0040) \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}.$$

Der Vergleich mit den Meßpunkten zeigt innerhalb der Meßgenauigkeit keinen Unterschied.

3. Integrale Messung der Rotation der 329 keV—487 keV-Winkelkorrelation in äußeren Magnetfeldern

Wir verwendeten für diese Messungen eine Sechsfach-Koinzidenzapparatur mit drei Detektoren und einen Gleichstromhochleistungsmagneten. Diese Apparatur wurde in einer früheren Arbeit⁸ ausführlich beschrieben.

Eine Messung des Impulshöhenspektrums eines im Magneten montierten Lanthanpräparats zeigte, daß kräftige Störungen durch Compton-Streuung an den Polschuhen vorlagen. Um diese Störungen zu verhindern, mußten wir bei vergrößertem Polabstand messen und die Polspitzen mit Blei abschirmen.

Wir führten Messungen bei 12400 Gauß und bei 38200 Gauß sowie bei abgeschaltetem Magnetfeld durch. Bei Verwendung eines Präparats von Lanthannitrat, gelöst in 3n Salpetersäure, erhielten wir die in Fig. 6 dargestellten Meßkurven. Die Messung bei schwächerem Feld zeigt eine kräftige Verschiebung der Winkelkorrelationskurven. Der zusätzlichen Messung zugrunde: Bei integraler Beobachtung nimmt die Anisotropie der Winkelkorrelation einer verzögerten Kaskade mit steigendem Magnetfeld stetig ab, bis schließlich vollständige Isotropie erreicht ist.

⁸ BODENSTEDT, E., H. J. KÖRNER, G. STRUBE, C. GÜNTHER, J. RADELOFF u. E. GERDAU: Z. Physik **163**, 1 (1961).

Die Winkelkorrelation einer prompten Beimischung wird dagegen durch das Magnetfeld nicht beeinflusst. Bei sehr starken Magnetfeldern wird die Gestalt der beobachteten Winkelkorrelation deshalb im wesentlichen durch die prompte Beimischung bestimmt. In unserem Fall reicht das Magnetfeld von 38 200 Gauß zwar noch keineswegs aus, um die Winkelkorrelation der über das 4+-Niveau laufenden Kaskade bis zur Isotropie abzuschwächen, doch erkennt man deutlich, daß die Gestalt der Kurven durch eine prompte Beimischung beeinflusst wird. Insbesondere liegen

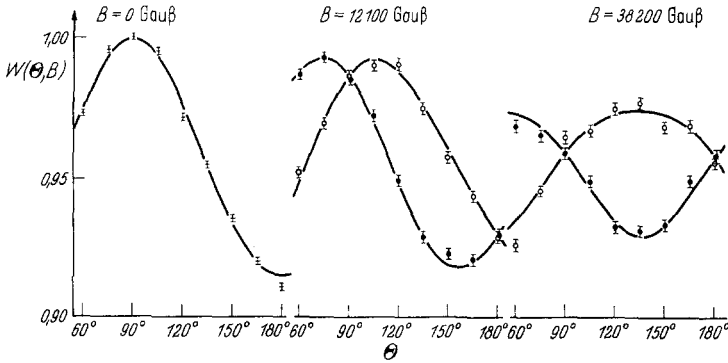


Fig. 6. Integrale Messung des g -Faktors des 2,083 MeV-Niveaus. Die Winkelkorrelation der 329 keV–487 keV-Kaskade wurde ohne äußeres Magnetfeld sowie bei 12 100 Gauß und bei 38 200 Gauß für beide Feldrichtungen gemessen. Die eingetragenen Kurven sind das Resultat eines Mehrparameterangleichs an die Meßwerte. Die Quelle für diese Messungen bestand aus Lanthannitrat gelöst in 3n HNO₃.

die Meßpunkte bei 180° im Vergleich zu den Meßpunkten bei 90° zu hoch, was nur durch prompte Beimischungen mit positiver Anisotropie verursacht werden kann.

Durch einen Mehrparameterangleich an alle Meßpunkte zugleich sollte eine Analyse der gemischten Winkelkorrelation und gleichzeitig eine genaue Bestimmung des mittleren Präzessionswinkels im isomeren Niveau möglich sein.

Die Winkelkorrelation für eine Mischung einer prompten und einer verzögerten Kaskade im äußeren Magnetfeld läßt sich in folgender Weise ausdrücken:

$$\begin{aligned}
 W(\Theta, B) = & a_0 + a_2 \cdot P_2(\cos \Theta) + a_4 \cdot P_4(\cos \Theta) + \\
 & + b_0 + b_2 \frac{\lambda^2}{\lambda + \lambda_2} \int_0^\infty e^{-\lambda t'} \cdot P_2\left(\cos\left(\Theta - \omega_L \cdot \frac{\lambda}{\lambda + \lambda_2} t'\right)\right) \cdot dt' + \\
 & + b_4 \frac{\lambda^2}{\lambda + \lambda_4} \int_0^\infty e^{-\lambda t'} \cdot P_4\left(\cos\left(\Theta - \omega_L \cdot \frac{\lambda}{\lambda + \lambda_4} t'\right)\right) \cdot dt',
 \end{aligned}$$

wo

$$\omega_1 = a_0 + a_2 \cdot P_2(\cos \Theta) + a_4 \cdot P_4(\cos \Theta)$$

die Winkelkorrelation der prompten Beimischung und

$$w_2 = b_0 + b_2 \cdot P_2(\cos \Theta) + b_4 \cdot P_4(\cos \Theta)$$

die Winkelkorrelation der über das isomere Niveau laufenden Kaskade sind.

Ferner sind:

ω_L = Larmorpräzessionsfrequenz im isomeren Niveau.

λ = Zerfallskonstante des isomeren Niveaus.

λ_2, λ_4 = Abschwächungsparameter; sie beschreiben die Störung der Winkelkorrelation im isomeren Niveau durch innere Felder.

Die Integrale lassen sich ausführen, und dann ist die Funktion für den Mehrparameterangleich mit einer elektronischen Rechenmaschine geeignet.

Angeglichen wurden die Parameter $a_0 + b_0, a_2, a_4, b_2, b_4$ und ω_L . Die Größe λ wurde unserer Lebensdauermessung und die Größe λ_2 unserer Verzögerungsmessung entnommen. Ferner wurde der Einfachheit halber $\lambda_2 = \lambda_4$ gesetzt. Der dadurch verursachte Fehler ist zu vernachlässigen, da der Koeffizient $b_4 \ll b_2$ ist und die Störung durch innere Felder ohnehin unbedeutend ist. Der Angleich wurde mit einer IBM 650 durchgeführt. Das Ergebnis für ω_L ist:

$$\omega_L (B = 12100 \text{ Gauß}) = (0,612 \pm 0,027) \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}.$$

Daraus folgt für den g -Faktor:

$$g = 1,06 \pm 0,05.$$

Die übrigen angeglichenen Parameter sind nicht interessant; denn der durchgeführte Angleich liefert noch nicht die absoluten Koeffizienten der beiden Winkelkorrelationen und ihr Mischungsverhältnis, da die Koeffizienten a_0 und b_0 nicht explizit bestimmt werden können. Man entnimmt dem Ausdruck für $W(\Theta, B)$, daß die Ausgleichsrechnung nur einen Wert für die Summe $a_0 + b_0$ liefern kann. Die angeglichenen Kurven sind in Fig. 6 eingetragen.

Wir haben zwei weitere Messungen mit Quellen anderer chemischer Zusammensetzung durchgeführt:

Einmal wurde Lanthannitrat in 3 n Salpetersäure unter Zugabe von Cer(IV)nitrat verwendet. Die Auswertung ergab:

$$\omega_L (B = 12100 \text{ Gauß}) = (0,643 \pm 0,027) \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$$

und damit:

$$g = 1,11 \pm 0,05.$$

Dann wurde Lanthanchlorid in 2n Salzsäure gelöst und Eisen(II)-chlorid bis zur halben Sättigungskonzentration zugegeben. Die Auswertung ergab:

$$\omega_L(B = 12100 \text{ Gau\ss}) = (0,648 \pm 0,025) \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$$

und

$$g = 1,12 \pm 0,05.$$

Innerhalb der Me\ssfehlergrenzen stimmen alle drei Resultate \u00fcberein.

Man mu\ss daraus schlie\ss\en, da\ss die Reduktion der nach dem β^- -Zerfall des Lanthans primär gebildeten Ce^{++++} -Ionen auch bei Zugabe eines starken Reduktionsmittels eine Zeit erfordert, die l\u00e4nger ist als die Lebensdauer des mittleren Niveaus der Kaskade von $T_{\frac{1}{2}} = 3,41 \cdot 10^{-9} \text{ s}$.

Um zu pr\u00fcfen, ob evtl. eine Magnetfeldabh\u00e4ngigkeit der St\u00f6rung durch innere Felder vorliegt, wie sie k\u00fcrzlich von STIENING und DEUTSCH⁹ beim Gadolinium gefunden wurde, f\u00fchrten wir einen neuen Angleich nur an die mit Magnetfeld gemessenen Kurven durch und verglichen die erhaltenen Koeffizienten mit denen der Winkelkorrelation, die bei abgeschaltetem Magnetfeld gemessen wurde. Die Werte stimmen innerhalb der Fehlergrenzen \u00fcberein, so da\ss wir diesen Effekt ausschlie\ss\en k\u00f6nnen.

4. Anwendung der Spinrotationsmethode

Die lange Lebensdauer des mittleren Niveaus, die gro\ss\e Anisotropie der Winkelkorrelation und der gro\ss\e g -Faktor erm\u00f6glichen die differentielle Beobachtung der Spinrotation als Funktion der Verz\u00f6gerungszeit. Diese Methode⁶ ist bisher nur beim 482 keV-Niveau des Ta^{181} ^{10,11}, beim 81 keV-Niveau des Cs^{133} ¹² und beim 69 keV-Niveau des Sc^{44} ¹³ angewendet worden.

Im Falle des 2,083 MeV-Niveaus des Ce^{140} hat diese Methode gegen\u00fcber der integralen Messung einmal den Vorteil, da\ss die prompte Beimischung nicht st\u00f6rt. Dann erm\u00f6glicht sie die Beobachtung der Larmorpr\u00e4zessionsfrequenz bis zu Verz\u00f6gerungszeiten von \u00fcber 10^{-8} s . Dies ist interessant, um evtl. doch paramagnetische Effekte nach der Reduktion des Ce^{++++} zum Ce^{+++} beobachten zu k\u00f6nnen.

Die Messung wurde in folgender Weise durchgef\u00fchrt: Es wurde ein zeitlich konstantes Magnetfeld von 39500 Gau\ss senkrecht zur Ebene der beiden NaJ(Tl) -Detektoren angewendet. Die Zeitspektren der

⁹ STIENING, R., and M. DEUTSCH: Phys. Rev. **121**, 1484 (1961).

¹⁰ DEUTSCH, M., A. Z. HRYNKIEWICZ and R. F. STIENING: MIT, Progress Report No. 1 (1959).

¹¹ MATTHIAS, E., u. T. LINDQVIST: Kurzvortrag, Fr\u00fchjahrstag. der Nordwestdeut. Physik. Ges. in Bad Pyrmont 1962.

¹² HRYNKIEWICZ, A. Z.: Postepy Fiz. **11**, 521 (1960).

¹³ BERGSTR\u00d6M, I., and P. THIERBERGER: Arkiv Fysik **22**, 307 (1962).

Koinzidenzen wurden für die beiden Winkelstellungen $\Theta=225^\circ$ und $\Theta=135^\circ$ aufgenommen. Alle 10 min wurde die Winkelstellung gewechselt und die Zeitspektren in zwei Untergruppen des Gedächtnisses eines Vielkanaldiskriminators getrennt gespeichert.

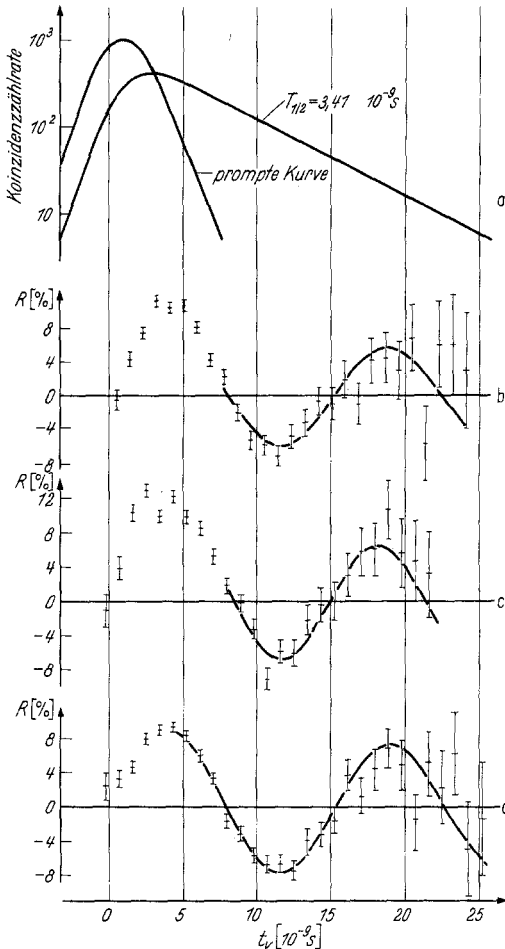


Fig. 7. Anwendung der Spinrotationsmethode auf die 329 keV - 487 keV $\gamma\gamma$ -Kaskade. *a* Prompte Kurve und Lebensdauerkurve $W(t_v)$ (nach Subtraktion der prompten Beimischung). *b* Quelle als Lanthanchlorid gelöst in 2n HCl unter Zugabe von Eisen(II)chlorid. Messung der Spinrotation bei 39 500 Gauß. Aufgetragen ist:

$$R = \frac{W(225^\circ, t_v, B) - W(135^\circ, t_v, B)}{W(t_v)}$$

c Entsprechende Messung mit einer Quelle von Lanthannitrat gelöst in 3n HNO₃. *d* Entsprechende Messung mit einer Quelle von Lanthannitrat gelöst in 3n HNO₃ unter Zugabe von Cer(IV)nitrat

Bildet man die Summe der beiden Zeitspektren, so erhält man die übliche Lebensdauerkurve. Sie ist nach Abzug der prompten Beimischung in Fig. 7 ganz oben zusammen mit einer prompten Kurve eingetragen. Bildet man dagegen die Differenz und normiert noch durch eine Division durch die „Lebensdauerkurve“, so ergibt sich etwa das Bild einer schwach gedämpften Sinusschwingung, die die Spinrotation widerspiegelt. In Fig. 7 sind die Meßresultate dargestellt, die für drei Quellen der gleichen chemischen Zusammensetzung wie bei den integralen Messungen gewonnen wurden.

Um den Meßkurven die Larmorpräzessionsfrequenz zu entnehmen, muß eine theoretische Kurve an die Meßpunkte angehängt werden. Dieser Angleich wird dadurch besonders kompliziert, daß die genaue Gestalt der prompten Auflösекurve berücksichtigt werden muß.

Für den Angleich haben wir unmittelbar die Differenz der beiden Zeitspektren $\Delta W = W(135^\circ, t_v, B) - W(225^\circ, t_v, B)$

verwendet. Die Normierung durch eine Division durch die „Lebensdauerkurve“ wurde erst nachträglich für die graphische Darstellung durchgeführt.

Die anzulegende theoretische Kurve ist gegeben durch:

$$\Delta W = \left(\frac{3}{2}a_2 + \frac{5}{8}a_4\right) \cdot \int_0^{\infty} \rho(t-t_v) \cdot e^{-(\lambda+\lambda_2)t} \cdot \sin(2\omega_L t) dt.$$

Hierin bedeuten:

$a_0 + a_2 P_2 + a_4 P_4 =$ Winkelkorrelation der untersuchten Kaskade.

$\rho(t-t_v) =$ Ansprechfunktion, definiert als die Wahrscheinlichkeit dafür, daß ein Ereignis, das im Zeitpunkt t stattgefunden hat, im Zeitpunkt t_v registriert wird. Diese Funktion ist auf Grund einer Messung der Gestalt der „prompten Kurve“ bekannt.

$\omega_L =$ Larmorpräzessionsfrequenz.

$\lambda_2 =$ Abschwächungsparameter für a_2 , der Einfachheit halber wurde in obiger Formel $\lambda_4 = \lambda_2$ vorausgesetzt.

Für die numerische Auswertung wurde das Integral durch eine Summation über die entsprechenden Treppenfunktionen ersetzt. Als Stufenbreite wurde die Kanalbreite des Vielkanaldiskriminators verwendet¹⁴. Die Ausgleichsrechnung wurde an einer IBM 650 durchgeführt.

Dabei wurden folgende Parameter angeglichen:

1. $\frac{3}{2}a_2 + \frac{5}{8}a_4$,
2. ω_L ,
3. Nullpunkt der t_v -Skala.

Folgende aus vorhergehenden Messungen bekannte Größen wurden in die Ausgleichsrechnung hineingegeben:

1. die genaue Gestalt der Ansprechfunktion $\rho(t-t_v)$,
2. die Zerfallskonstante λ ,
3. der Schwächungsparameter λ_2 .

Bei der Messung an einer Quelle von Lanthannitrat in salpetersaurer Lösung mit Zugabe von Cer(IV)nitrat, sollte die Larmor-Präzessionsfrequenz zeitlich konstant sein. Wir verwendeten für die Auswertung alle Meßpunkte bis auf die ersten fünf; diese ersten Meßpunkte wurden nicht ausgenutzt, da sie besonders große systematische Fehler haben können.

¹⁴ KÖRNER, H. J., J. RADELOFF u. E. BODENSTEDT: Erscheint in Z. Physik **172**, 279 (1963).

Die angegliche Kurve ist in Fig. 7d eingetragen. Der Nullpunkt der auf der Abszissenachse in Fig. 7 eingetragenen Zeitskala ist ebenfalls diesem Angleich entnommen. Er liegt ein wenig links vom Schwerpunkt der gemessenen prompten Kurve. Die Ursache für diese Abweichung, die etwas außerhalb der Fehlergrenzen liegt, ist nicht bekannt.

Das Resultat für ω_L lautet:

$$\omega_L = (2,10 \pm 0,05) \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$$

und damit ergibt sich für den g -Faktor:

$$g = 1,11 \pm 0,04$$

in guter Übereinstimmung mit dem bei der integralen Messung gewonnenen Wert.

Bei den anderen Messungen war zu erwarten, daß die Larmor-Präzessionsfrequenz mit zunehmender Verzögerung ansteigt, falls hinreichend schnell die Ionen des dreiwertigen Cers gebildet werden. Die erzielte Meßgenauigkeit erschien uns nicht ausreichend zu sein, um einen Angleich mit einer zeitabhängigen Präzessionsfrequenz $\omega_L = \omega_L(t)$ zu versuchen. Statt dessen beschränkten wir uns auf einen Angleich mit konstanter Frequenz an das Kurvenstück des zweiten und dritten Bogens. Wieder glichen wir auch den Zeitnullpunkt an; denn eine Änderung der Frequenz gegenüber dem ersten Bogen würde bei dieser Auswertung eine Phasenverschiebung hervorrufen. Die Auswertung ergab folgende Resultate:

a) Quelle als Lanthannitrat in 3 n Salpetersäure:

$$\omega_L = (2,39 \pm 0,12) \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}.$$

Verschiebung des Nullpunktes gegenüber der ersten Quelle:

$$\Delta(t_v=0) = (1,54 \pm 0,49) \cdot 10^{-9} \text{ s}.$$

b) Quelle als Lanthanchlorid in 2 n HCl mit Eisen(II)chloridzusatz:

$$\omega_L = (2,08 \pm 0,10) \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}.$$

Verschiebung des Nullpunktes gegenüber der ersten Quelle:

$$\Delta(t_v=0) = (0,22 \pm 0,57) \cdot 10^{-9} \text{ s}.$$

Im Fall a) tritt eine geringe Erhöhung der Präzessionsfrequenz auf, und es liegt auch eine merkliche Phasenverschiebung im erwarteten Sinne vor. Merkwürdigerweise wird dagegen im Fall b), wo ein starkes Reduktionsmittel angewendet wird, keine meßbare Erhöhung der Rotationsgeschwindigkeit beobachtet.

Bei einer Interpretation dieser kleinen Effekte ist allerdings Vorsicht angebracht, denn alle angegebenen Fehler berücksichtigen nur die tatsächliche Streuung der Meßwerte um die angeglichene Kurve und die Fehler der in die Ausgleichsrechnung hineingegebenen übrigen Daten. Systematische Fehler, die bei der Spinrotationsmethode besonders leicht auftreten können, sind nicht berücksichtigt, da es äußerst schwierig erschien, ihre Größe abzuschätzen.

5. Diskussion der Resultate

Wie im ersten Abschnitt beschrieben wurde, unterscheiden sich die erwarteten g -Faktoren für die drei möglichen Interpretationen des 2,083 MeV-Niveaus erheblich.

Unser Meßresultat

$$g = +1,11 \pm 0,04^*$$

liegt nur wenig oberhalb des theoretischen Werts für die $(g7/2, d5/2)_4$ -Zwei-Protonen-Konfiguration. Man muß daraus den Schluß ziehen, daß im wesentlichen diese Konfiguration vorliegt. Kleine Beimischungen der beiden anderen Konfigurationen lassen sich selbstverständlich nicht ausschließen.

Unser Ergebnis für die Koeffizienten der Winkelkorrelation der 329 keV—487 keV-Kaskade stimmt besser mit den theoretischen Werten einer 3-4-2-Kaskade überein, als die bisher bekannten Werte. Die Auswertung erlaubt eine genaue Analyse des $M1$ -, $E2$ -Mischungsverhältnisses für den 329 keV-Übergang. Es handelt sich um einen fast reinen $M1$ -Übergang mit einer $E2$ -Beimischung von nur 0,17%. Das Vorzeichen des Mischungsparameters δ ist positiv. Da über die Struktur des oberen Niveaus nichts bekannt ist, haben wir darauf verzichtet, eine Interpretation dieses Mischungsverhältnisses und des Vorzeichens von δ zu versuchen.

Die Verzögerungsexperimente an flüssigen Quellen von Lanthaninitrat in oxydierender Lösung ergaben eine besonders kleine Abschwächung durch innere Felder. Die Meßfehlergrenzen des Abschwächungsparameters $\lambda_2 = (0,032 \pm 0,020) \cdot \lambda$ geben die Standardabweichung wieder. Es ist deshalb nicht ausgeschlossen, daß überhaupt keine Abschwächung vorliegt. Dieses Ergebnis war aus folgenden Gründen zu erwarten:

* Nach Fertigstellung der Arbeit wurde uns eine Messung von R.M. LEVY und D.A. SHIRLEY, Phys. Let. 3, 46 (1962) bekannt, die den gleichen g -Faktor zu $g = +1,83 \pm 0,16$ bestimmten. Die Diskrepanz konnte inzwischen aufgeklärt werden. Sie wurde verursacht durch eine nicht korrekte Berücksichtigung des Untergrundes in der Messung von LEVY und SHIRLEY. Der neu berechnete Wert ist mit unserer Messung in Übereinstimmung.

Die Abschwächung von Winkelkorrelationen bei flüssigen Quellen kann bekanntlich zwei Ursachen haben. Einmal kann es sich um Wechselwirkungen des elektrischen Quadrupolmoments und des magnetischen Dipolmoments des Kerns mit den elektrischen und magnetischen Feldern der eigenen Atomhülle handeln, und dann sind Wechselwirkungen des elektrischen Quadrupolmoments mit den Atomhüllen der Umgebung möglich. Für mehrere Elemente der Seltenen Erden sind starke Störungen der ersten Art bekannt. Sie werden von den Feldern der unvollständigen $4f$ -Elektronen-Schalen hervorgerufen. Diese Möglichkeit scheidet im Falle des Ce^{+++} aus, da seine $4f$ -Schale vollständig leer ist und keine inneren Felder vorliegen. Für wäßrige Lösungen der Ionen der Seltenen Erden ist in den Fällen des Sm^{+++} und des Er^{+++} nachgewiesen worden, daß Störungen der zweiten Art sehr klein sind*. Da das chemische Verhalten der Elemente der Seltenen Erden sehr ähnlich ist und Cer im Gegensatz zu den stark deformierten Kernen Gadolinium und Erbium zu den sphärischen Kernen gehört und damit das elektrische Quadrupolmoment klein ist, sollten Störungen der zweiten Art auch beim Cer zu vernachlässigen sein.

Um das Ergebnis des Verzögerungsexperiments bei Verwendung einer reduzierenden Lösung richtig zu deuten, ist es wichtig, daß man abzuschätzen versucht, ob das Magnetfeld der $4f$ -Schale des Ce^{+++} am Kernort stark genug wäre, um eine merkliche Abschwächung der Winkelkorrelation hervorzurufen.

Die Theorie ergibt für die Größe des zu erwartenden Abschwächungsparameters λ_2 ¹⁵:

$$\lambda_2 = a' \cdot [1 - (2I + 1) \cdot W(I \ 1 \ 2I, I \ I)],$$

wo:

$$a' = \frac{2}{3} \tau_J \cdot \omega_J^2 \cdot I \cdot (I + 1) \cdot J \cdot (J + 1) \quad \text{und} \quad \omega_J^2 = \frac{g^2 \cdot B_{\text{inst}}^2 \cdot \mu_k^2}{\hbar^2 \cdot J \cdot (J + 1)}.$$

Folgende Daten sind bekannt:

$$\begin{aligned} I &= 4, & g &= 1,11, \\ W(4 \ 1 \ 24, 44) &= \frac{17}{180}, & B_{\text{inst}} &= 1,57 \cdot 10^6 \text{ Gauß}, \\ J &= \frac{5}{2}, & \mu_k &= 5,05 \cdot 10^{-24} \text{ erg/Gauß}. \end{aligned}$$

* STIENING und DEUTSCH⁹ fanden bei differentiellen Winkelkorrelationsmessungen im Fall von Sm^{+++} fast keine Störungen; hier sind Störungen der ersten Art klein, da die $4f$ -Schale am Kernort nur sehr schwache Felder hervorruft. Beim Er^{+++} sind die Koeffizienten der Winkelkorrelation nach kürzlichen Messungen unserer Arbeitsgruppe unabhängig von der Viskosität der Lösungen, was Störungen der zweiten Art ausschließt.

¹⁵ BODENSTEDT, E., H. J. KÖRNER, C. GÜNTHER and J. RADELOFF: Nuclear Phys. **22**, 145 (1961).

Die einzige unbekannte Größe ist die Spin-Relaxationszeit τ_J der 4f-Schale.

Bisher ist über die Spin-Relaxationszeiten der Seltenen Erden in wäßrigen Lösungen nur wenig bekannt:

Aus der beobachteten magnetischen Störung schloß man im Falle von Erbium und von Dysprosium auf $\tau_J = 3,5 \cdot 10^{-13}$ s¹⁵ bzw. $\tau_J = 9 \cdot 10^{-13}$ s¹⁶. Die zweite Abschätzung liefert wahrscheinlich einen etwas zu großen Wert, da sie voraussetzt, daß die elektrische Wechselwirkung der 4f-Schale zu vernachlässigen ist. Diese Voraussetzung ist nach einer Messung des Verhältnisses von λ_2 zu λ_4 ¹⁷ nicht gut erfüllt.

Nimmt man im Falle von Pm¹⁴⁷ an, daß die beobachtete Störung¹⁸ vom Magnetfeld der 4f-Schale herrührt, so erhält man für Promethium:

$$\tau_J = 3,7 \cdot 10^{-14} \text{ s.}$$

AL'TSHULER und VALIEV¹⁹ führten eine theoretische Untersuchung der Spin-Relaxations-Zeiten der paramagnetischen Ionen durch. Sie erhielten insbesondere, daß die Spin-Relaxationszeit für Ce⁺⁺⁺ in wäßrigen Lösungen um eine bis zwei Zehnerpotenzen kürzer sein sollte als für Cu⁺⁺. Für Cu⁺⁺ nennen die Autoren experimentelle Ergebnisse über die Linienbreite der paramagnetischen Resonanz und geben auch theoretische Abschätzungen an. Die Werte liegen übereinstimmend bei etwa 10^{-9} s. Man erwartet danach für Ce⁺⁺⁺: $\tau_J > 10^{-12}$ s.

Aus dieser Abschätzung für die Spin-Relaxationszeit würde man für λ_2 erwarten: $\lambda_2 > 0,15 \cdot 10^{19} \text{ s}^{-1}$.

Dieser Parameter bedeutet eine sehr starke Abschwächung, und man müßte aus unserer Verzögerungsmessung den Schluß ziehen, daß die Reduktion des Ce⁺⁺⁺ zum Ce⁺⁺⁺ in dem unserer Beobachtung zugänglichen Zeitintervall von 10^{-8} s noch nicht erfolgt ist. Allerdings erscheint uns die theoretische Abschätzung für τ_J zweifelhaft, wenn man den Wert mit den obengenannten experimentell begründeten Zahlen für andere Seltene Erden vergleicht.

Die Untersuchung der Rotation der Winkelkorrelation der 329 keV—487 keV-Kaskade in äußeren Magnetfeldern ergab innerhalb der begrenzten Meßgenauigkeit keine eindeutigen Unterschiede für die verschiedenen Quellen. Da die Larmor-Präzessionsfrequenz nach der Reduktion zum Ce⁺⁺⁺ um 36% vergrößert wird, beweist diese Messung, daß der Reduktionsprozeß für die von uns verwendeten Quellen länger als 10^{-8} s dauert.

¹⁶ COHEN, S. G., and G. GLAT: Nuclear Phys. **38**, 1 (1962).

¹⁷ GÜNTHER, C.: Diplomarbeit Hamburg 1962.

¹⁸ BODENSTEDT, E., H. J. KÖRNER, F. FRISIUS, D. HOVESTADT u. E. GERDAU: Z. Physik **160**, 33 (1960).

¹⁹ AL'TSHULER, S. A., and K. A. VALIEV: Soviet Phys. JETP **35**, 661 (1959).

Der schwach angedeutete Effekt bei der Quelle in salpetersaurer Lösung ohne Zugabe von inaktivem Cer(IV)nitrat könnte seine Ursache in einer geringfügigen Reduktion der in unwägbaren Mengen gebildeten Ce^{++++} -Ionen durch die Ionenpaare haben, die die β -Strahlung in der Quelle erzeugt.

Die Langsamkeit des Reduktionsprozesses durch zweiwertiges Eisen kann man nur durch die Annahme einer großen „Aktivierungsenergie“ für diese Ionenreaktion erklären. Es wäre interessant zu prüfen, ob andere Reduktionsmittel meßbare Effekte hervorrufen.

Nachtrag bei der Korrektur: Inzwischen wurde uns eine Arbeit von R.L. REYNOLDS und R.W. LUMRY, J. of Chem. Phys. 23, 2460 (1955) bekannt, in der eine Messung der Aktivierungsenergie mit chemischen Methoden beschrieben wird. Für die mittlere Lebensdauer des Ce^{++++} -Ions bei Zugabe von Fe^{++} -Ionen ergibt sich daraus etwa 10^{-3} s. Wir danken Herrn Professor VON STACKELBERG für die Diskussion unserer Meßresultate und den Hinweis auf diese Arbeit.

Wir danken Herrn Professor W. JENTSCHKE für sein besonderes Interesse an unseren Messungen und die stetige Förderung unserer Arbeitsgruppe.

Die chemischen Arbeiten führte Herr Dr. A. ROGGENBUCK durch. An den langwierigen Messungen und numerischen Auswertungen waren beteiligt:

Frau A. SEEMANN, Fräulein E. SCHWARZ, Fräulein L. MAYER, Herr J. BRAUNSFURTH, Herr W. KRULL, Herr P. STEINER und Herr J. HEISENBERG.

Wir danken Fräulein ALICE MACIEL, Universidade do Rio Grande do Sul, Brasilien, für ihre Mitarbeit während ihres Gastaufenthalts an unserem Institut im Juli 1962.

Die Bestrahlung der zahlreichen Proben wurden von der Gesellschaft für Kernenergieverwertung in Geesthacht durchgeführt.

Das Bundesministerium für Atomkernenergie förderte diese Untersuchung durch Bereitstellung finanzieller Mittel.