Formfaktor des β -Spektrums von ⁹⁹Tc

M. Reich und H. M. Schüpferling

Institut für Strahlenphysik der Universität Stuttgart

Eingegangen am 17. Juli 1974

Shape Factor of the β -Spectrum of ⁹⁹Tc

Abstract. The β -spectrum of the second non-unique forbidden $\frac{9}{2}^{+} - \frac{5}{2}^{+}$ transition in the decay of ⁹⁹Tc has been investigated with a 4π -Si(Li)-semiconductor-spectrometer. The shape factor has been determined:

$$S(W) = k \left(1 - 3.97 \ W + \frac{1.15}{W} + 3.05 \ W^2 \right).$$

It was also possible to fit the data with the normal ξ -Approximation to the theoretical shape factor

$$S(W) = k(q^2 + 0.54 p^2).$$

The second forbidden $2^+ - 0^+ \beta^-$ -transition in the decay of ³⁶Cl was reinvestigated to test the spectrometer as well as the fitting-technique.

1. Einleitung

An unserem İnstitut werden verbotene β -Zerfälle untersucht, während parallel dazu am Institut für Theoretische Physik theoretische Modellrechnungen durchgeführt werden. Zum Vergleich der Ergebnisse von Theorie und Experiment kann der Formfaktor S(W) eines β -Spektrums herangezogen werden, der die Kernmatrixelemente und damit die physikalisch interessante Information über den Zerfall enthält.

Ziel der vorliegenden Arbeit war es, den Formfaktor des 2fach verbotenen β^- -Spektrums von ${}^{99}\text{Tc}$ experimentell zu bestimmen. Spin und Parität des ${}^{99}_{43}\text{Tc}$ werden in der Literatur [9] eindeutig mit ${}^{92}_{2}$ + angegeben. Für den Tochterkern ${}^{99}_{44}\text{Ru}$ wäre nach dem Schalenmodell ein ${}^{7}_{2}$ +- oder ${}^{52}_{2}$ +-Grundzustand möglich. Ein ${}^{92}_{2}$ + $-{}^{72}_{2}$ +-Übergang wäre jedoch erlaubt und stünde damit im Widerspruch zum hohen ft-Wert. Es handelt sich also um einen 2fach nicht unique verbotenen ${}^{92}_{2}$ + $-{}^{52}_{2}$ + β -Übergang mit den Auswahlregeln: $\Delta I = 2$, keine Paritätsänderung. Im Gegensatz zu den erlaubten und einfach verbotenen β -Zerfällen sind mehrfach verbotene Zerfälle bisher noch verhältnismäßig wenig untersucht worden, obwohl dies sehr erfolgversprechend wäre; denn selbst im allgemeinsten Fall tragen nur vier Kernmatrixelemente zu einem 2 fach verbotenen β -Zerfall bei, gegenüber sechs Matrixelementen bei einfach verbotenen β -Zerfällen. Eine solche Untersuchung erfordert jedoch wegen der großen Halbwertszeiten bzw. geringen spezifischen Aktivitäten lichtstarke Spektrometer. Für die Messung wurde deshalb ein 4π – Si(Li)-Halbleiterspektrometer verwendet, dessen Energieauflösung derjenigen von Magnetspektrometern recht nahe kommt und das sich aufgrund der hohen Transmission besonders zur Messung derart schwacher Quellen eignet.

Da die Form eines β -Spektrums stark durch die Eigenschaften des Spektrometers selbst beeinflußt werden kann, war es erforderlich, deren Einfluß

auf die Messung eines kontinuierlichen Spektrums zu bestimmen. Dazu wurde die Ansprechfunktion, d.h. die Linienform, die monoenergetische Elektronen im Spektrometer liefern, gemessen und analytisch dargestellt. Mit dieser Ansprechfunktion konnten die gemessenen β -Spektren korrigiert werden.

2. Der Aufbau des 4π -Si(Li)-Spektrometers

Der Aufbau des Spektrometers wurde an anderer Stelle [4] bereits ausführlich beschrieben. Als Zählkristalle wurden zwei planar gedriftete Si(Li)-Halbleiterdetektoren vom Typ KS02 der Firma Simtec, Montreal, verwendet. Die Fensterdicke betrug weniger als 0,2 µm Si und die Sperrschicht war 2 mm dick. Das Präparat wurde "sandwichartig" zwischen die beiden Detektoroberflächen eingeschlossen, wobei der Abstand der beiden Eintrittsfenster weniger als 8 µm betrug. Bei einem Durchmesser des empfindlichen Zählvolumens von 8 mm entspricht dies einem toten Raumwinkel von weniger als 0,2% des gesamten Raumwinkels, vorausgesetzt, daß annähernd punktförmige Präparate verwendet werden. Durch diese 4π -Geometrie wird auch eine Verfälschung der Spektren durch Rückstreuung von Elektronen vermieden.

Als ladungsempfindlicher Vorverstärker diente ein Nuclear Enterprises Modell NE 5287, dessen Eingangsstufe zusammen mit den beiden Detektoren in einen handelsüblichen Horizontal-Drip-Feed-Kryostat derselben Firma eingebaut wurde. Fig. 1 zeigt die Anordnung der Detektoren und des Eingangsfeldeffekt-Transistors am Kühlfinger des Kryostaten. Durch die Kühlung der Detektoren und des Eingangstransistors auf Stickstofftemperatur werden das Rauschen und der Leckstrom auf ein Minimum reduziert.

Im nachgeschalteten Hauptverstärker Ortec-Modell 410 wurden die unipolaren Impulse weiterverstärkt und durch RC-Differenzier- und Integrationsglieder in bipolare Signale umgewandelt, die dann auf den Analogeingang eines Laben 1024-Vielkanalanalysators gelangten.

3. Experimentelle Durchführung

3.1. Testmessungen

Um die Eignung des Spektrometers zur Messung von β -Spektren langlebiger Isotope zu untersuchen, wurden zahlreiche Testmessungen durchgeführt. Die Linearität der Elektronik konnte mit Hilfe eines Quecksilberrelais-Eichimpulsgebers überprüft werden. Die dabei beobachteten Abweichungen von der Linearität



Fig. 1. Der Einbau der Detektoren und der Eingangsstufe in den Kryostat. Die zwischen den Si-Detektoren und dem Kühlfingerflansch auf Keramikstützen aufgebaute Vorverstärkerstufe ist nicht eingezeichnet. Der NaJ-Kristall dient zum Nachweis von Röntgenstrahlen in Koinzidenz mit den Elektronen

waren geringer als 0,2%. Die Energieeichung des Spektrometers erfolgte mit den Konversions- und γ -Linien des ²⁰⁷Bi, ¹³⁷Cs und ¹¹³Sn sowie den Röntgenlinien des ²⁴¹Am. – Das Energieauflösungsvermögen betrug 7 keV FWHM für die 624,25 keV-Konversionselektronenlinie von ¹³⁷Cs.

Die Kenntnis von Linearität und Auflösungsvermögen gewährleistet aber noch nicht die Eignung des Spektrometers für die Messung kontinuierlicher Spektren. Dazu mußte noch die Ansprechfunktion gemessen werden. Dies geschah mit Hilfe der 624.25 keV-Konversionselektronen von ¹³⁷Cs, die in Koinzidenz mit den sie begleitenden K-Röntgenstrahlen nachgewiesen werden mußten, da sie von einem β -Spektrum und von y-Quanten, die ein Compton-Spektrum liefern, überlagert sind. Die K-Röntgenstrahlung ist energiereich genug, um aus Detektoren und Vakuumhülse zu entweichen; sie wurde in einem NaJ-Kristall. der sich direkt vor der nur 0,2 mm dicken Stirnseite der Vakuumhülse befand, nachgewiesen (s. Fig. 1). Bei diesen Messungen stellte sich heraus, daß ein Rückstreukontinuum durch die 4π -Geometrie vollständig vermieden wird. Auffällig war jedoch, daß alle Meßkurven einen exponentiellen Ausläufer in Richtung abnehmender Energie aufwiesen.

3.2. Korrekturverfahren

Um den Einfluß der Form der Ansprechfunktion und die daraus resultierende Korrektur der gemessenen β -Spektren rechnerisch erfassen zu können, muß diese zunächst in die analytische Form R(W, W')gebracht werden, wobei R(W, W') die Wahrscheinlichkeit darstellt, daß ein Elektron der Energie W' mit einer Energie W nachgewiesen wird. Die Methode, nach der sich der Ausdruck R(W, W') für die gemessene Absprechfunktion bestimmen läßt, wurde bereits an anderer Stelle ausführlich beschrieben [5].

Durch die Abweichung der Ansprechfunktion von einer Deltafunktion wird ein β -Spektrum gestört. Sei N(W') die theoretische Energieverteilung der β -Teilchen:

 $N(W') = \operatorname{const} F(Z, W') p W'(W'_0 - W')^2 \cdot S(W'), \qquad (1)$

worin

- W' die Teilchenenergie in relativistischen Einheiten
- *p* der Teilchenimpuls in relativistischen Einheiten
- *W*'₀ die Endpunktsenergie in relativistischen Einheiten

F(Z, W') die Fermifunktion

$$S(W')$$
 der Formfaktor

sind, so be rechnet sich das gemessene, gestörte Spektrum D(W) nach

$$D(W) = \int_{1}^{W_0} N(W') \cdot R(W, W') \, dW'.$$
(2)

Eine numerische Berechnung dieses Integrals für die β -Spektren von ³⁶Cl und ⁹⁹Tc im Anschluß an die Auswertung hat gezeigt, daß die β -Spektren durch den asymmetrischen Ausläufer in der Ansprechfunktion sehr viel stärker verfälscht werden als durch eine symmetrische Ansprechfunktion (Gaußfunktion) gleicher Halbwertsbreite. Eine Gaußverteilung wirkt sich nur in der Nähe des Endpunkts aus und sorgt dafür, daß auch oberhalb der Endpunktsenergie noch Impulse registriert werden. Die asymmetrische Ansprechfunktion liefert dagegen im gesamten oberen Drittel der Spektren eine völlig andere Korrektur. Dies ist verständlich, da wegen der Asymmetrie mehr Elektronen mit zu geringer Energie nachgewiesen werden. Dadurch wird bewirkt, daß das gestörte Spektrum D(W) gegenüber N(W) insgesamt in Richtung kleiner Energien verschoben erscheint.

3.3. Messung des β -Spektrums

Das Isotop ⁹⁹Tc wurde von der Firma NEN Chemicals als NH₄TcO₄-Lösung in H₂O mit einer spezifischen Aktivität von 16,8 mCi/Gramm Tc geliefert. Mit Hilfe eines Elektrosprayverfahrens [10–12] wurden durch Aufsprühen der in reinem Äthanol stark verdünnten Lösung auf dünne Formvarfolien (Dicke kleiner als 50 µg/cm²) Präparate von ca. 2 mm Durchmesser und sehr gleichmäßiger Struktur erhalten. Es wurden Präparate verschiedener Aktivität mit Intensitäten zwischen 10 und 200 Zerfällen pro sec hergestellt, was einer Präparatdicke von 1–20 µg/cm² entsprach.

Da der β -Zerfall von ⁹⁹Tc zu 100% ins Ru-Grundniveau geht und damit keine weitere Strahlung auftritt, ist dem β -Spektrum nur noch ein Untergrund überlagert, der von der Umgebungs- und Höhenstrahlung herrührt. Dieser wurde zunächst mehrere 24 Std lang gemessen, wobei die Detektoren bereits in 4π -Geometrie montiert waren. Danach schloß sich die Messung des β -Spektrums an. Um die gewünschte statistische Genauigkeit zu erhalten, waren Meßzeiten bis zu 70 Std erforderlich. Nach jeweils 12 Std wurde die Messung unterbrochen und das Röntgenspektrum einer starken ²⁴¹Am-Quelle aufgenommen. Eine Untersuchung dieser Spektren ergab. daß die Drift der Elektronik äußerst gering war und bei der Endpunktsenergie des β -Spektrums weniger als 1 keV betrug.

Um den Einfluß von Energieverlusten in der Quelle selbst untersuchen zu können, wurden Tc-Präparate verschiedener Intensität gemessen. Diese Einzelmessungen stimmten bis auf den Bereich unterhalb von 30 keV völlig überein. Dieser Bereich wurde jedoch bei der Auswertung ohnehin nicht berücksichtigt, da hier der Untergrund bereits 5% der β -Zählrate ausmacht.

3.4. Auswertung

Bei Gültigkeit der ξ -Approximation, $\left(\xi = \frac{\alpha Z}{2R} \gg W_0\right)$, die beim Technetium recht gut erfüllt ist, läßt sich der theoretische Ausdruck für den Formfaktor 2fach nicht unique verbotener β -Spektren stark vereinfachen. Man erhält [6]

$$S(W) = k(q^2 + \lambda^2 p^2) \tag{3}$$

mit

$$\lambda^{2} = \frac{1}{4} \frac{2 + x \varDelta_{1} - 2\varDelta}{2 + x \varDelta_{1} - \varDelta}.$$
 (3 a)

Dabei ist

 $p = \sqrt{W^2 - 1}$ der Elektronenimpuls in relativistischen Einheiten

 $q = W_0 - W$ der Antineutrinoimpuls in relativistischen Einheiten

 $x = \frac{g_A}{g_V}$ das Verhältnis der Kopplungskonstanten von

Axialvektor- zur Vektorwechselwirkung,

und Δ und Δ_1 sind Matrixelementverhältnisse

$$\Delta = \frac{1}{\xi} \frac{A_{ij}}{R_{ij}}, \quad \Delta_1 = \frac{i T_{ij}}{R_{ij}}.$$

Die Bestimmung der Formfaktorparameter k, λ und W_0 erfolgte durch Anpassung des Faltungsintegrals (2) an das gemessene Spektrum nach der Methode der Maximum Likelihood unter Verwendung des Programms MINUITS aus der CERN Computerbibliothek, das auf der CDC 6600 des Rechenzentrums der Universität Stuttgart lief.

Um eine mögliche Abweichung von der ξ -Approximation von vornherein zu berücksichtigen, wurden die Spektren neben der 2-parametrigen Anpassung (3) zusätzlich noch mit der allgemeineren 4-parametrigen Formel

$$S(W) = k(1 + aW + b/W + cW^{2})$$
(4)

angepaßt. Diese Form wurde gewählt, da sie, obwohl sie aus der β -Theorie nur für einfach verbotene β -

Spektren folgt, in einer neueren Arbeit von Willett und Spejewski [1] auch im Fall des 2fach verbotenen β^{-} -Spektrums von ³⁶Cl mit Erfolg angewandt wurde.

4. Test mit ³⁶Cl

Das 2fach verbotene β^- -Spektrum von ³⁶Cl wurde schon des öfteren gemessen und analysiert [1-3]. In der vorliegenden Arbeit wurde es nochmals gemessen, um durch Vergleich mit den früheren Arbeiten sowohl die Zuverlässigkeit des Spektrometers bei der Messung langlebiger Isotope als auch des Korrektur- und Auswerteverfahrens zur Bestimmung des Formfaktors zu untersuchen. Die Messung wurde in gleicher Weise wie beim Technetium durchgeführt.

Tabelle 1. Ergebnisse der Fits für die 2- und 4-parametrige Anpassung des β -Spektrums von ³⁶Cl

End- punkts- energie (keV)	λ^2	a	b	с	
708	2,11	1	-0,24	0,42	Lit. [1]
711	1,707	-0,981	-0,232	0,378)	
712	1,685	0,970	-0,243	0,375 }	Messung
713	1,780	-0,951	-0,250	0,364)	
714	1,67 + 0,33 - 0,24	-	-		Lit. [3]
717	$1,76^{+0,10}_{-0,09}$	-	-		Lit. [2]

Da der Fehler des bei der Anpassung erhaltenen Wertes für die Endpunktsenergie W_0 wesentlich durch den Fehler der Energieeichung bestimmt ist und damit W_0 eine Sonderstellung unter den übrigen Parametern einnimmt, wurden die Spektren noch für 2 feste Werte für W_0 , die sich vom Fitwert $W_0 = 712$ keV um ± 1 keV unterschieden, angepaßt, um so den Einfluß von W_0 auf die übrigen Parameter untersuchen zu können.

Die Ergebnisse der Fits sind in der Tabelle1 für die 2- und 4-parametrige Anpassung dargestellt.

Beim Vergleich der vorliegenden Messung mit den früheren Arbeiten kann man feststellen, daß sich das hier benutzte 4π -Si(Li)-Spektrometer für die Messung der Spektrenform verbotener β -Spektren gut eignet. Die Abweichungen von den in der Literatur [1] angegebenen Werten könnten darauf zurückzuführen sein, daß dort die endliche Auflösung eines 4π -Si(Li)-Spektrometers durch Entfaltung mit einer Gaußfunktion berücksichtigt wurde.

M. Reich und H. M. Schüpferling: Formfaktor des β -Spektrums von ⁹⁹Tc



Fig. 2. Das β -Spektrum von ⁹⁹Tc. Der Untergrund ist bereits abgezogen und die Auflösungskorrektur durchgeführt. Die durchgehende Linie stellt das mit dem Formfaktor

S(W)

$$= k \left(1 - 3,97 W + \frac{1,15}{W} + 3,05 W^2 \right)$$

angepaßte theoretische Spektrum dar

Fig. 3. Formfaktordiagramm von ⁹⁹Tc. Die durchgehende Linie entspricht dem Formfaktor $S(W) = k(q^2 + 0.54 p^2)$

5. Spektrenform des β-Spektrums von ⁹⁹Tc

Das gemessene Spektrum ist in Fig. 2 dargestellt. Der Untergrund ist bereits abgezogen und die Auflösungskorrektur durchgeführt. Die durchgezogene Linie zeigt das theoretische Spektrum N(W) mit dem bei der Anpassung erhaltenen Formfaktor

$$S(W) = k \left(1 - 3,97 W + \frac{1,15}{W} + 3,05 W^2 \right).$$
 (5)

Die Endpunktsenergie wurde bestimmt zu

 $W_0 = 293 \pm 2 \text{ keV}.$

Der angegebene Fehler setzt sich aus der Unsicherheit des Fits und dem Fehler der Energieeichung zusammen.

Die 2-parametrige Anpassung lieferte für S(W) den Wert

$$S(W) = k(q^2 + 0.54 p^2).$$

Die Ergebnisse aus den Fits mit wiederum verschiedenen festen Endpunktsenergien sind in Tabelle 2 für die 2- und 4-parametrige Anpassung angegeben.

Die Güte der Anpassung läßt sich am besten an Hand der Formfaktordiagramme beurteilen. Diese sind in



Tabelle 2. Ergebnisse aus den Fits für verschiedene feste Endpunktsenergien für 2- und 4-parametrige Anpassung des β -Spektrums von ⁹⁹Tc

Endpunkts- energie (keV)	λ ²	а	b	с	
290 ± 4	$0,5^{+0,17}_{-0,1}$	_	-	_	Lit. [3]
292 ± 3	_ ,	_	-	_	Lit. [7]
292	0,541	4,05	1,17	2,86)	
292,5	0,536			_	
293	0,529	-3,97	1,15	3,05 }	unsere
293,5	0,523			- 1	Messung
294,5	-	-3,42	0,94	_{2,61} J	

Fig. 3 für die 2-parametrige und in Fig. 4 für die 4-parametrige Anpassung dargestellt. Wie man sieht, werden die experimentellen Formfaktorwerte durch beide Parametersätze recht gut wiedergegeben.

6. Diskussion

Der Formfaktor kann aus einem gemessenen β -Spektrum nur bis auf einen konstanten Faktor angegeben werden; der Parameter k, der unter anderem auch von der Quellenintensität abhängt, ist deshalb ohne Bedeutung und wurde bei den Ergebnissen nicht mit aufgeführt. Obwohl das gemessene Spektrum durch den Formfaktor (5) recht gut wiedergegeben wird (vgl. Fig. 2), ist es nicht möglich, aus diesen Parameterwerten die Kernmatrixelemente zu berechnen. Der Grund dafür ist der, daß die Werte für *a*, *b* und *c* keineswegs eindeutig sind, d.h., es kann durchaus einen Parametersatz k', a', b', c' $\pm k$, a, b, c geben, mit dem sich das Spektrum ebensogut anpassen läßt. Ein direkter Fit mit dem theoretischen Formfaktor, in dem die Matrixelemente bzw. deren Verhältnisse als Parameter enthalten sind, ist zwar möglich, aber ebensowenig eindeutig. Eindeutig lassen sich die Matrixelemente nur zusammen mit anderen β -Experimenten, etwa der Messung der Elektronenpolarisation, bestimmen.

Aus der Tatsache, daß auch die 2-parametrige Anpassung im gesamten Fitbereich eine recht gute Übereinstimmung mit dem gemessenen Spektrum liefert, läßt sich schließen, daß keine Abweichung von der ξ -Approximation vorliegt. Nun ist die Bestimmung von λ^2 zwar eindeutig, jedoch lassen sich aus dem einen Parameter λ^2 keine unabhängigen Werte für die Matrixelementenverhältnisse Δ und Δ_1 berechnen. Die Theorie des erhaltenen Vektorstroms (CVC) liefert jedoch eine Beziehung zwischen den beiden Kernmatrixelementen A_{ij} und R_{ij} , die unabhängig vom Kernpotential ist, und zwar gilt [8]

$$\Delta_{\rm CVC} = 2,4 + \frac{1}{\xi} (W_0 - 2,5).$$

Dies ergibt für ⁹⁹Tc den Wert $\Delta_{\rm CVC} = 2,3$.

Setzt man in (3a) für Δ den CVC-Wert Δ_{CVC} ein, so läßt sich jetzt zusammen mit $\lambda^2 = 0.54 \pm 0.02$ ein experimenteller Wert für Δ_1 berechnen, und zwar erhält man die beiden Lösungen

$$\Delta_{1 \exp} = -4.04^{+0.6}_{-0.4}$$

M. Reich und H. M. Schüpferling: Formfaktor des β-Spektrums von ⁹⁹Tc

und

$$\Delta_{1 \exp} = +1,28^{+0.02}_{-0.02}$$

Aus der Messung des β -Spektrums allein ist es jedoch nicht möglich, zwischen diesen beiden Werten zu entscheiden.

Diese Arbeit wurde am Institut für Strahlenphysik der Universität Stuttgart durchgeführt. Herrn Prof. Dr. K.-W. Hoffmann danken wir herzlich für die wohlwollende Förderung dieser Arbeit und sein stetes Interesse am Fortgang der Untersuchungen.

Literatur

- 1. Willett, J.B., Spejewski, E.H.: Nucl. Instr. Methods 52, 77 (1967)
- Johnson, R.G., Johnson, O.E., Langer, L.M.: Phys. Rev. 102, 1142 (1956)
- 3. Lipnik, P., Sunier, J.W.: Phys. Rev. 145, 746 (1966)

- 4. Schüpferling, H. M., Hoffmann, K.-W.: Z. Physik 266, 129 (1974)
- 5. Schüpferling, H. M.: To be published in Nucl. Instr.
- Preston, M.A.: Physics of the Nucleus Massachusetts: Addison-Wesley Publishing Co. 1963
- 7. Taimuty, S.J.: Phys. Rev. 81, 461 (1951)
- 8. Fujita, J.I.: Progr. Theor. Phys. 28, 338 (1962)
- 9. Kessler, K.G., Meggers, W.F.: Phys. Rev. 80, 901 (1950)
- 10. Robinson, P.S.: Nucl. Instr. Methods 40, 136 (1966)
- 11. Bertolini, G., Pasquali, G., Fantechi, R.: Nucl. Instr. Methods 32, 355 (1965)
- 12. Fuschini, E., Maroni, C., Porceddu, C., Veronesi, P.: Nucl. Instr. Methods 26, 301 (1964)

Dr. rer. nat. H. M. Schüpferling Dipl.-Phys. M. Reich D-7000 Stuttgart 80 Pfaffenwaldring 58 Bundesrepublik Deutschland