**Zeitschrift:** Helvetica Physica Acta

**Band:** 33 (1960)

Heft: V

Artikel: Über Zweiquanten-Übergänge an Ba^137

Autor: Beusch, W.

**DOI:** https://doi.org/10.5169/seals-113080

## Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Mehr erfahren

## **Conditions d'utilisation**

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. En savoir plus

#### Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. Find out more

**Download PDF:** 10.12.2025

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, https://www.e-periodica.ch

# Über Zweiquanten-Übergänge an Ba 137

## von W. Beusch

Physikalisches Institut der ETH, Zürich

(26. III. 1960)

Abstract. According to second-order perturbation theory, transitions in nuclear isomers should occur for which two quanta are emitted with arbitrarily divided energies. The transition probability for such a process has been calculated for Ba<sup>137m</sup> for various multipole transition combinations. The dependence of transition probability upon energy for electric multipole transitions differs from that for magnetic.

Experimental coincidence measurements have been undertaken using high time resolution and two-dimensional pulse analysis. Corrections were determined for random coincidences and for contamination activity. The probability for emission of two Bremsstrahlung quanta was calculated; it was found to be negligibly small.

The measured ratio of transition probabilities for first and for second order processes was

$$T^{(2)}: T^{(1)} = (6.4 \pm 3.1) \times 10^{-6}$$
.

This value is approximately 10 times smaller than that expected from a theoretical estimate.

## 1. Einleitung

Für die Emission oder Absorption von Quanten der elektromagnetischen Strahlung besteht seit der Entdeckung der Gesetze der Quantenmechanik eine wohlfundierte Theorie. Die Wechselwirkung des elektromagnetischen Feldes mit einem materiellen System von bewegten Ladungen ist sehr gut bekannt. Die theoretischen Voraussagen für Emission oder Absorption von Photonen sind also im wesentlichen so genau wie die Kenntnis der quantenmechanischen Eigenschaften des materiellen Systems.

Diese theoretischen Voraussagen (Emissionswahrscheinlichkeit, Linienbreite usw.) werden nach einem Näherungsverfahren, der Diracschen Störungsrechnung gewonnen. Die Näherung besteht im wesentlichen in einer Entwicklung nach Potenzen der Wechselwirkungsenergie (genauer: nach Potenzen der Kopplungskonstanten  $e^2/\hbar c$ ). Allerdings beschreibt hier jedes Glied dieser «Potenzreihe» einen anderen Vorgang: in der ersten Ordnung werden Prozesse mit Entstehen oder Vernichten von einem Photon, in der zweiten solche mit zwei Photonen usw. beschrieben. Das von Null verschiedene Glied niedrigster Ordnung liefert im allgemeinen

die richtige Aussage über einen bestimmten Prozess. Strahlungsprozesse höherer Ordnung sind sicher in jedem Fall vorhanden; die Theorie liefert aber dafür einen um Grössenordnungen kleineren Beitrag und in einem Experiment werden sie von der überwiegenden Zahl der Prozesse niedrigster Ordnung überdeckt.

Ein Versuch, solche Strahlungsprozesse höherer Ordnung einmal nachzuweisen, ist demnach von einem gewissen Interesse. Er würde eine Bestätigung der Theorie geben und ausserdem noch weitere Information, z. B. über höher liegende Energieniveaux des materiellen Systems, liefern.

Solche Prozesse wurden zuerst von M. Goeppert-Maier theoretisch vorausgesagt und ihre Wahrscheinlichkeit in Dipolnäherung berechnet. Es wurde festgestellt, dass der damals schon experimentell bekannte Raman-Effekt formal gleich behandelt werden kann<sup>1</sup>)<sup>2</sup>).

In der Physik der Atomhülle konnten die Strahlungsprozesse zweiter Ordnung noch nicht festgestellt werden, und es besteht auch wenig Hoffnung, dass dies je geschehen wird, sind doch schon die «verbotenen Übergänge» vom Typ M1 oder E2 im Laboratorium nicht nachzuweisen. Der Grund liegt darin, dass ein angeregter Zustand seine Energie vorwiegend durch strahlungslose Stossprozesse verliert, wenn die Wahrscheinlichkeit für den Strahlungsprozess klein ist.

Bei Hochfrequenz-induzierten Übergängen zwischen Hyperfeinstrukturniveaux konnte tatsächlich eine Zweiquantenabsorption gefunden werden<sup>3</sup>)<sup>4</sup>), dieser Effekt betrifft aber die Absorption und einen ganz anderen Energiebereich als der hier untersuchte Prozess.

Im Atomkern wird die Situation für den Nachweis günstiger, existieren hier doch angeregte Zustände, die nur durch hochgradig verbotene Einquantenübergänge zerfallen können. Als Konkurrenzprozesse treten hier innere Konversion und eventuell innere Paarbildung auf.

Bei einem  $0^+$ – $0^-$ -Übergang sind auch innere Konversion und innere Paarerzeugung streng verboten<sup>5</sup>), möglich ist nur noch gleichzeitige Emission von  $2 \gamma$ -Quanten, von 2 Elektronen oder von einem Quant und einem Elektron. Leider kennt man aber bisher noch keinen Fall, wo ein Kern nur durch  $0^+$ – $0^-$ -Übergang Quanten emittiert.

Bei einem  $0^+$ – $0^+$ -Übergang ist zwar die Einquanten-Emission immer noch streng verboten, innere Konversion (Monopol-Übergang) und eventuell innere Paarbildung sind aber möglich. Diese angeregten Zustände haben deshalb im Gebiet von 1,5 MeV nur eine Lebensdauer von der Grössenordnung  $10^{-8}$  sec. Störend für einen experimentellen Nachweis sind hier die Annihilationsstrahlung als Folge der inneren Paarbildung und  $\gamma$ -Quanten aus anderen angeregten Zuständen. Für den Nachweis günstig wäre der  $0^+$ – $0^+$ -Übergang in Zr<sup>90</sup>. Der angeregte Zustand entsteht durch  $\beta$ -Zerfall aus  $Y^{90}$  mit einem Verzweigungsverhältnis von

 $2,24\cdot 10^{-2}$ %. Es treten keine  $\gamma$ -Quanten auf. Ungünstig ist hier allerdings die kurze Lebensdauer von 64 h des  $Y^{90}$ ) 6.

Für das vorliegende Experiment wurde ein Übergang verwendet, der für die Einquanten-Emission zwar nicht verboten, wegen der grossen Drehimpulsänderung im Kern aber stark verlangsamt ist. Die beiden Quanten im höheren Prozess können dann je von niedrigerer Multipolordnung sein, so dass es möglich sein könnte, die Zweiquantenemission hier nachzuweisen. Im Experiment ist das durch Koinzidenzmessung möglich, wenn im untersuchten Kern keine anderen  $\gamma$ -Quanten in Koinzidenz auftreten.

Es wurde das 156-sec-Isomer Ba<sup>137\*</sup> verwendet, das durch  $\beta$ -Zerfall aus Cs<sup>137</sup> entsteht. Das metastabile Niveau zerfällt über einen M4-Übergang in den Grundzustand, die  $\gamma$ -Energie ist 661 keV. Eine Abschätzung der Übergangswahrscheinlichkeit für Zweiquantenemission, bezogen auf den M4-Übergang, folgt im nächsten Abschnitt.

Unter den bisherigen Versuchen zum Nachweis der Zweiquantenemission an Atomkernen ist mir nur eine kurze Mitteilung von Goldhaber<sup>7</sup>) aus dem Jahre 1947 bekannt. Es wird dort die Vermutung ausgesprochen, dass bei der durch Neutronenbestrahlung angeregten 1,5-min-Aktivität von natürlichem Iridium die beobachteten weichen  $\gamma$ -Quanten durch Zweiquanten-Zerfall zu erklären seien. Das Experiment, bei dem die  $\gamma$ -Energien durch kritische Absorption gemessen wurden, lässt aber keine eindeutigen Schlüsse zu. Die beobachteten weichen Quanten könnten sehr wohl von anderen Übergängen in den komplexen Niveauschemata der Ir-Isotope herstammen.

Im Anschluss an diese Arbeit hat GOLDBERGER<sup>8</sup>) die Übergangswahrscheinlichkeit für Zweiquanten-Emission für den Fall eines 0<sup>+</sup>-0<sup>-</sup>-Übergangs in diesem Isomer abgeschätzt\*). Er stützte sich dabei auf eine frühere Arbeit von Sachs<sup>5</sup>) der die 0<sup>+</sup>-0<sup>-</sup>-Übergänge zur Erklärung der Isomere vorgeschlagen hatte. Weitere, nicht sehr ausführliche, theoretische Behandlungen diese Effekts findet man bei Dalitz<sup>9</sup>) und Oppenheimer und Schwinger<sup>10</sup>).

Nachdem eine Abschätzung für den hier betrachteten Fall vorhanden und die Messungen schon im Gange waren, erschien eine ausführliche theoretische Arbeit über dieses Problem<sup>11</sup>). Darin wurden alle Multipolordnungen berücksichtigt und auch Spektren und Winkelverteilungen angegeben. Diese Arbeit bestätigte die Richtigkeit der für dieses Experiment ausgeführten Abschätzung\*\*).

<sup>\*)</sup> Man weiss heute, dass es sich um einen E3-Übergang handelt.

<sup>\*\*)</sup> Seit diese Arbeit zur Veröffentlichung eingesandt worden ist, haben andere Autoren eine Messung des gleichen Prozesses an  $Xe^{131}$  beschrieben: T. Alväger und H. Ryde, Arkif f. Fysik 17, 535 (1960). Sie finden einen deutlich sichtbaren Effekt. Es wird hier allerdings die gleichzeitige Emission von einem  $\gamma$ -Quant und einem X-Quant aus der Konversion oder zwischen zwei X-Quanten festgestellt.

## 2. Theorie

Es soll hier die Übergangswahrscheinlichkeit für Zweiquantenemission bei beliebiger Multipolordnung des einfachen Zerfalls diskutiert werden. Die Spektren der γ-Quanten beim Prozess zweiter Ordnung sind unabhängig von den Kerneigenschaften; sie werden für einen repräsentativen Fall berechnet. Für den gleichen Fall sollen die Übergangswahrscheinlichkeiten für erste und zweite Ordnung mit Hilfe des Einteilchenmodells verglichen werden. Es wird diskutiert, wie weit diese Abschätzung zuverlässig ist.

Die Berechnung der Übergangswahrscheinlichkeiten für den einfachen γ-Zerfall wurde dem Artikel von Moskowski<sup>12</sup>) entnommen. Die Bezeichnungen sind im wesentlichen diejenigen von Alder, Bohr et al. 13).

a) Matrixelemente und Übergangswahrscheinlichkeiten. Das elektromagnetische Feld sei durch sein Vektorpotential A(x, t) beschrieben. Es wird nach einem orthonormalen System von transversalen elektrischen bzw. magnetischen Eigenschwingungen zerlegt, die ein Drallmoment  $\lambda$ eine magnetische Quantenzahl  $\mu$  und eine Energie  $\hbar \cdot c \cdot k$  besitzen:

$$A_{k\lambda\mu}^{E} = \sqrt{\frac{8\pi c^{2}}{\lambda (\lambda+1) R}} \operatorname{rot} \mathbf{L} j_{\lambda}(kr) Y_{\lambda\mu} (\vartheta, \varphi)$$

$$A_{k\lambda\mu}^{M} = ik \sqrt{\frac{8\pi c^{2}}{\lambda (\lambda+1) R}} \mathbf{L} j_{\lambda}(kr) Y_{\lambda\mu} (\vartheta, \varphi)$$

$$(2.1)$$

Darin bedeuten  $\mathbf{L} = -i \cdot \mathbf{r} \times \text{grad}$  den Drehimpulsoperator,  $i_{\lambda}(kr)$  die sphärische Besselfunktion und  $Y_{\lambda\mu}(\vartheta,\varphi)$  die normalisierten Kugelfunktionen in der Definition von Condon und Shortley<sup>14</sup>).

Die Zahl der Eigenschwingungen pro Intervall der Wellenzahl dk bzw. der Energie dE ist dann

$$\frac{dN}{dk} = \frac{R}{\pi}, \quad \frac{dN}{dE} = \frac{R}{\pi\hbar c} \tag{2.2}$$

Für einen Übergang von einem Kernzustand | 1 > zu einem anderen < 2 | erhält man die folgenden Matrixelemente der elektrischen bzw.</p> magnetischen Wechselwirkung

$$H'(E) = \sqrt{\frac{4 \pi \hbar (\lambda + 1)}{R \lambda \omega}} \frac{k^{\lambda}}{(2 \lambda + 1)!!} \frac{E_1 - E_2}{\hbar} \langle 2 \mid \mathfrak{M}(E \lambda \mu) \mid 1 \rangle$$

$$H'(M) = \sqrt{\frac{4 \pi \hbar (\lambda + 1)}{R \lambda \omega}} \frac{k^{\lambda}}{(2 \lambda + 1)!!} k \cdot c \langle 2 \mid \mathfrak{M}(M \lambda \mu) \mid 1 \rangle$$

$$(2.3)$$

$$H'(M) = \sqrt{\frac{4\pi\hbar(\lambda+1)}{R\lambda\omega}} \frac{k^{\lambda}}{(2\lambda+1)!!} k \cdot c \langle 2 \mid \mathfrak{M}(M\lambda\mu) \mid 1 \rangle$$
 (2.4)

 $\mathfrak{M}(E\lambda\mu)$ ,  $\mathfrak{M}(M\lambda\mu)$  sind die Multipoloperatoren für elektrische bzw. magnetische Übergänge mit den Quantenzahlen  $\lambda$  und  $\mu$  des Photons<sup>12</sup>). Die Kern-Matrixelemente  $\langle 2 \mid \mathfrak{M} \mid 1 \rangle$  hängen, ausser der Multipolordnung nur von den Eigenschaften des Kerns ab, die übrigen Faktoren in  $H'_{1\rightarrow 2}$  sind, mit einer Ausnahme, durch die Eigenschaften des emittierten Photons bestimmt.

Die genannte Ausnahme betrifft den Faktor  $E_1 - E_2$ , der die Energiedifferenz zwischen den Kernzuständen vor und nach dem Zerfall darstellt. Beim Prozess erster Ordnung ist diese gerade gleich der Energie des  $\gamma$ -Quants, beim Zweiquantenübergang ist dies nicht mehr der Fall. Dieser Faktor tritt nur beim elektrischen Übergang auf. (Siehe auch Eichler und Jacob<sup>11</sup>).

Es ist an dieser Stelle von Interesse, die Herkunft dieses Energiefaktors etwas zu verfolgen. Der Operator der Wechselwirkung zwischen einem System von bewegten Ladungen, das durch die Stromdichte j beschrieben sei und dem elektromagnetischen Feld A ist allgemein

$$H' = -rac{1}{c}\int m{j} \; m{A} \; d au$$

Für A(x, t) ist eine Entwicklung nach dem Funktionssystem (2.1) einzusetzen. In der Näherung  $k \cdot r \ll 1$  gilt

$$\operatorname{rot} \boldsymbol{L} j_{\lambda}(kr) \ Y_{\lambda\mu}(\vartheta,\varphi) = i(\lambda+1) \operatorname{grad} \frac{(kr)^{\lambda}}{(2\ \lambda+1)\,!\,!} \ Y_{\lambda\mu}(\vartheta,\varphi) = \operatorname{grad} F(r,\vartheta,\varphi)$$

Der Wechselwirkungsoperator ist also proportional zu

$$\int \boldsymbol{j} \operatorname{grad} F(r, \vartheta, \varphi) d\tau$$

Eine partielle Integration liefert

$$\int \boldsymbol{j} \operatorname{grad} F(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{\vartheta}, \boldsymbol{\varphi}) d\tau = -\int \operatorname{div} \boldsymbol{j} \cdot F(\boldsymbol{r}, \boldsymbol{\vartheta}, \boldsymbol{\varphi}) d\tau$$

Nach der Kontinuitätsgleichung gilt

$$\operatorname{div} \boldsymbol{j} = -\frac{d\varrho}{dt}$$

Der Operator der Ladungsdichte  $\varrho$  wirkt nur auf die Kern-Wellenfunktionen und ist nicht explizit zeitabhängig. Das Matrixelement ist also

$$\langle 2 \mid \frac{d\varrho}{dt} \mid 1 \rangle = \frac{i}{\hbar} (E_1 - E_2) \langle 2 \mid \varrho \mid 1 \rangle$$

wobei  $E_1$  und  $E_2$  nun offensichtlich Kernenergien sind. Beim magnetischen Matrixelement tritt keine derartige zeitliche Differentiation auf; hingegen enthält die Normierungskonstante des  $A_{k\lambda\mu}^M$  (4.1) einen Faktor k, der bei  $A_{k\lambda\mu}^E$  fehlt.

Nach der Diracschen Störungsrechnung ist die totale Übergangswahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit

$$T_{i \to f} = \frac{2\pi}{\hbar} \varrho \mid H'_{i \to f} \mid^2 \tag{2.5}$$

wobei  $\varrho = dN/dE$  die Zustandsdichte für den Endzustand ist. Einsetzen von Gl. (2.2), (2.3) und (2.4) liefert für die Einquantenemission

$$T_{i \to f}^{(1)} = \frac{8 \pi}{\hbar} \frac{\lambda + 1}{\lambda} \frac{k^{2 \lambda + 1}}{(2 \lambda + 1)!!} | \langle f | \mathfrak{M} | i \rangle |^{2}$$
 (2.6)

Beim Übergang zweiter Ordnung tritt

$$\left| \sum_{z} \frac{H_{i \to z}^{'} \cdot H_{z \to f}^{'}}{E_{i} - E_{z}} \right|^{2}$$

an die Stelle von  $H'_{i\to f}$ . Es ist aber noch weiter zu beachten, dass Gleichung (2.5) das Resultat einer Integration über alle Endzustände darstellt, aus der die Erhaltung der Energie hervorgeht. Beim Prozess zweiter Ordnung treten zwei Photonen auf, es ist demnach zweifach zu integrieren. Im Endzustand ist die Energie erhalten; eine Integration über alle Endzustände liefert die Beziehung

$$E_i - E_f = \hbar \ c \ (k_1 + k_2) \tag{2.7}$$

Der Zwischenzustand  $|z\rangle$  wird dagegen nur virtuell erreicht; der Energiesatz gilt nicht und die Anregungsenergie  $E_i$ – $E_f$  kann beliebig auf die beiden Photonen verteilt werden.

Damit die folgenden Formeln nicht allzu schwerfällig werden, soll im folgenden nur ein Zwischenzustand  $|z\rangle$  betrachtet werden. Es sei mit E die Gesamtenergie eines Zustandes, mit  $\hbar\omega$  die Energie des Kerns und mit  $\hbar \cdot c \cdot k$  die Energie eines  $\gamma$ -Quants bezeichnet. Für die drei auftretenden Zustände gilt dann

$$E_{i} = \hbar \omega_{i}$$

$$E_{z} = \hbar \omega_{z} + \hbar c k_{1}$$

$$E_{f} = \hbar \omega_{f} + \hbar c k_{1} + \hbar c k_{2}$$

$$(2.8)$$

Als Abkürzung sei  $\hbar (\omega_i - \omega_f) = \hbar \omega_0$  gesetzt.

Die Integration über das Kontinuum des Zwischenzustandes  $|z\rangle$ , d. h. Integration über  $k_1$  liefert dann nach Einsetzen der Matrixelemente (2.3) und (2.4)

$$T_{i\rightarrow f}^{(2)} = \frac{32\,\pi}{\hbar^2}\,\frac{(\lambda_1+1)\,\left(\lambda_2+1\right)}{\lambda_1\,\lambda_2\,\left[\left(2\,\lambda_1+1\right)\,!\,!\right]^2\left[\left(2\,\lambda_2+1\right)\,!\,!\right]^2}\,\left|\,\left\langle i\,\right|\,\mathfrak{M}\left(1\right)\,\left|\,z\right\rangle\left\langle z\,\right|\,\mathfrak{M}\left(2\right)\,\left|\,f\right\rangle\,\left|^2\right\rangle$$

$$\times \left(\frac{\omega_{\sigma}}{c}\right)^{2} \int_{0}^{\omega_{0}/c} \frac{k_{1}^{\mu_{1}} \left(\frac{\omega_{0}}{c} - k_{1}\right)^{\mu_{2}}}{(\omega_{i} - \omega_{z} - ck_{1})^{2}} c d k_{1}$$
 (2.9)

Dabei ist angenommen, dass einer der beiden Übergänge vom elektrischen Typ ist.

Wären beide Übergänge elektrisch (im vorliegenden Fall z. B. E2+E3), so würde  $T_{i\to t}$  einen Faktor

$$\left(\frac{\omega_{\delta_1}}{c}\right)^2 \left(\frac{\omega_{\delta_2}}{c}\right)^2$$

enthalten. Die Übergangswahrscheinlichkeit wäre dann angenähert proportional zu

$$\left| \sum_{z} \langle i \mid \mathfrak{M} (1) \mid z \rangle \langle z \mid \mathfrak{M} (2) \mid f \rangle \frac{(\omega_{i} - \omega_{z}) (\omega_{z} - \omega_{f})}{(\omega_{i} - \omega_{z} - ck_{1})} \right|^{2}$$

Beachtenswert ist dabei, dass insgesamt ein Faktor  $\sim \omega_z^2$  im Zähler auftritt. Die Exponenten  $\mu_1$  und  $\mu_2$  und die Grösse  $\omega_{\sigma}$  sind durch den Typ der Multipoloperatoren  $\mathfrak{M}(1)$  und  $\mathfrak{M}(2)$  bestimmt. Ihre Werte sind in der weiter unten folgenden Tabelle 1 aufgeführt.

Das Integral (2.9) kann durch Einführung von dimensionslosen Variablen noch etwas vereinfacht werden. Es seien

$$\xi = \frac{ck_1}{\omega_0} \quad \zeta = \frac{\omega_z - \omega_i}{\omega_0}$$

dann wird (2.9)

$$T_{i \to f}^{(2)} = \frac{32 \pi}{\hbar^{2} c} \frac{(\lambda_{1} + 1) (\lambda_{2} + 1)}{\lambda_{1} \lambda_{2} \left[ (2 \lambda_{1} + 1)!! \right]^{2} \left[ (2 \lambda_{2} + 1)!! \right]^{2}} \left( \frac{\omega_{0}}{c} \right)^{2 (\lambda_{1} + \lambda_{2}) - 1} \left( \frac{\omega \sigma}{c} \right)^{2} \times \left| \langle i \mid \mathfrak{M} (1) \mid z \rangle \langle z \mid \mathfrak{M} (2) \mid f \rangle \right|^{2} \cdot \int_{0}^{1} \left[ \frac{\xi^{\mu_{1}} (1 - \xi)^{\mu_{2}}}{(\zeta + \xi)^{2}} + \frac{(1 - \xi)^{\mu_{1}} \xi^{\mu_{2}}}{(\zeta + 1 - \xi)^{2}} \right] d\xi \right\} (2.10)$$

 $\xi$  ist proportional der Energie des ersten emittierten  $\gamma$ -Quants. Weil die beiden Quanten aber nicht unterscheidbar sind, wurde unter dem Integral der symmetrische Ausdruck hinzu addiert.

b) Auswahlregeln und höhere Niveaux. Beim Kern des Ba<sup>137</sup>, das im vorliegenden Experiment untersucht wurde, sind Spin und Parität von Grund- und metastabilem Zustand mit grosser Sicherheit bekannt (3/2+bzw. 11/2-), der Zerfall geht über einen reinen M4-Übergang mit einem totalen Konversionskoeffizienten  $\alpha=0,114^{15}$ ). Die Zweiquanten-Emission ist natürlich für die niedrigsten möglichen Multipolordnungen, d. h.  $\lambda_1+\lambda_2=4$  am wahrscheinlichsten. Wir müssen also die folgenden Kombinationen von Multipolen betrachten:

$$E2 + M2$$
,  $M2 + E2$ ,  $E1 + M3$ ,  $M3 + E1$ ,  $M1 + E3$ ,  $E3 + M1$ .

Bei allen diesen Kombinationen beträgt die Änderung des Drehimpulses 4 Einheiten und die Parität ist ungerade.

Von den höheren Niveaux des Ba<sup>137</sup> haben Swann und Metzger<sup>16</sup>) einige Angaben machen können. Sie fanden aus der Anregungskurve für den  $(n, n'\gamma)$ -Prozess drei Niveaux von 1,05, 1,78 und 2,18 MeV, welche

auf das isomere Niveau von 0,661 MeV zerfallen. Über Spin und Parität der höheren Niveaux ist nichts bekannt.

FAGG<sup>17</sup>) hat durch Coulomb-Anregung mit  $\alpha$ -Teilchen ein Niveau bei 0,281 MeV gefunden, das wahrscheinlich einen Spin  $I=1/2^+$  besitzt. Dieses kann aber für die Zweiquantenemission nichts beitragen.

c) Numerische Rechnungen. Das Integral der Gleichung (2.10) kann elementar gelöst werden, das Resultat ist aber für eine numerische Auswertung ungünstig, weil es eine Differenz zwischen grossen Zahlen liefert (siebenstellige Logarithmen notwendig). Wenn man die beiden Summanden zusammenfasst und die Substitution  $x = 2 \xi - 1$ ;  $z = 2 \zeta + 1$  verwendet, so wird (2.10)

$$\int_{0}^{1} \left[ \frac{\xi^{\mu_{1}} (1-\xi)^{\mu_{2}}}{(\xi+\xi)^{2}} + \frac{(1-\xi)^{\mu_{1}} \xi^{\mu_{2}}}{(\xi+1-\xi)^{2}} \right] d\xi$$

$$= \left( \frac{1}{2} \right)^{\mu_{1} + \mu_{2} - 1} \int_{-1}^{+1} \frac{(1-x)^{\mu_{1}} (1+x)^{\mu_{2}} (z+x)^{2} + (1+x)^{\mu_{1}} (1-x)^{\mu_{2}} (z-x)^{2}}{(z^{2}-x^{2})^{2}} dx$$

$$= \left( \frac{1}{2} \right)^{\mu_{1} + \mu_{2} - 1} \frac{1}{z^{4}} \int_{0}^{+1} \left[ (1-x)^{\mu_{1}} (1+x)^{\mu_{2}} (z+x)^{2} + (1+x)^{\mu_{1}} (1-x)^{\mu_{2}} (z-x)^{2} \right]$$

$$\left( 1 + 2 \frac{x^{2}}{z^{2}} + 3 \frac{x^{4}}{z^{4}} + \cdots \right) dx \tag{2.11}$$

Dieses Integral kann nun bequem ausgewertet werden. Wenn man noch daran erinnert, dass  $\hbar\omega_{\sigma}$  die Energiedifferenz der Kernzustände beim elektrischen Übergang darstellt, so folgen für die 6 zu betrachtenden Fälle die Angaben der Tabelle 1.

Tabelle 1

Art des Übergangs	$\mu_1$	$\mu_2$	$\frac{\omega_{\sigma}}{\omega_{0}}$	Integral aus (2.10)			
E2 + M2	3	5	ζ	$0.0159  \left(\frac{1}{z^2} + \frac{0.40}{z^3} + \frac{0.38}{z^4} + \cdots\right)$			
M2+E2	5	3	$1+\zeta$	$0.0159  \left(\frac{1}{z^2} - \frac{0.40}{z^3} + \frac{0.38}{z^4} - \cdots\right)$			
E1 + M3	1	7	ζ	$0.111  \left(\frac{1}{z^2} + \frac{1.45}{z^3} + \frac{1.25}{z^4} + \cdots\right)$			
M3+E1	7	1	$1+\zeta$	$0.111  \left(\frac{1}{z^2} - \frac{1.45}{z^3} + \frac{1.25}{z^4} + \cdots\right)$			
E3 + M1	5	3	ζ	$0.0159  \left(\frac{1}{z^2} - \frac{0.40}{z^3} + \frac{0.38}{z^4} - \cdots\right)$			
M1 + E3	3	5	$1+\zeta$	$0.0159  \left(\frac{1}{z^2} + \frac{0.40}{z^3} + \frac{0.38}{z^4} + \cdots\right)$			

Die Energieverteilung eines der beiden Quanten ist durch den Integranden in (2.10) gegeben. Sie ist in der folgenden Figur 1 dargestellt. Der Maßstab ist so gewählt, dass die Fläche unter dem Spektrum immer gleich der Einheit ist. Die Spektren hängen noch von der Energie des Zwischenzustandes ab. Für die Berechnung wurde angenommen, dass nur ein Zwischenzustand mit  $\zeta=2$ , also  $\omega_z-\omega_f=3$  ( $\omega_i-\omega_f$ ) beiträgt. Für Zwischenzustände mit höherer Energie würde der Unterschied bei verschiedener Reihenfolge der gleichen Multipole immer mehr verschwinden.

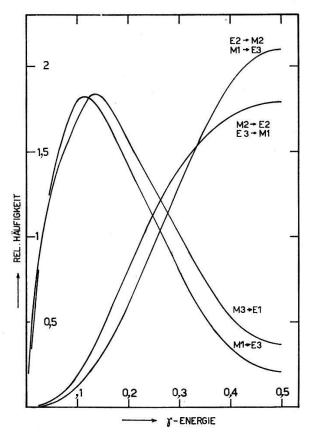


Fig. 1

Spektren der bei einem M4-Isomer möglichen 2-Quanten-Übergänge. Die Kurven sind auf Fläche =1 normiert, die Einheit des Energiemaßstabes ist  $E_i-E_f$ . Für die Berechnung wurde ein Zwischenniveau der Energie  $E_z$  angenommen, mit  $E_z-E_f=3$   $(E_i-E_f)$ 

d) Abschätzung des Verhältnisses  $T^{(2)}$ :  $T^{(1)}$ . Aus den Gleichungen (2.6), (2.10), und (2.11) kann das Verhältnis der Übergangswahrscheinlichkeiten gebildet werden.

$$\frac{T^{(2)}}{T^{(1)}} = \frac{4}{\hbar c} \frac{\lambda}{\lambda + 1} \frac{\lambda_1 + 1}{\lambda_1} \frac{\lambda_2 + 1}{\lambda_2} \frac{[(2 \lambda + 1)!!]^2}{[(2 \lambda_1 + 1)!!]^2 [(2 \lambda_2 + 1)!!]^2} \left(\frac{\omega_{\sigma}}{\omega_{0}}\right)^2 \\
\times J \cdot \frac{|\langle i \mid \mathfrak{M} (1) \mid z \rangle \langle z \mid \mathfrak{M} (2) \mid f \rangle |^2}{|\langle i \mid \mathfrak{M} (M 4) \mid f \rangle |^2} \tag{2.12}$$

worin  $\lambda$  die Multipolordnung des einfachen Zerfalls und J das Integral der Gleichung (2.10) (Tabelle 1) bedeutet.

Die Matrixelemente für die einzelnen Übergänge hängen ausser der Multipolordnung  $\lambda_{1,2}$  nur von den Eigenschaften des Kerns ab. Für die

vorliegende Abschätzung werden die Werte des Einteilchenmodells, d. h. eines einzelnen Protons in einem geschwindigkeitsunabhängigen kugelsymmetrischen Potential eingesetzt 18)\*).

Man definiert für den Einquantenzerfall eine reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit  $B(\lambda)$ 

$$B(\lambda) = \sum_{\mu, M_f} |\langle I_f M_f | \mathfrak{M}(\lambda) | I_i M_i \rangle|^2$$
 (2.13)

und schreibt damit also für die totale Übergangswahrscheinlichkeit (siehe 2.6)

$$T^{(1)} = \frac{8 \pi (\lambda + 1)}{\lambda \lceil (2 \lambda + 1)!! \rceil^2} \cdot \frac{1}{\hbar} k^{2 \lambda + 1} B(\lambda)$$
 (2.14)

Für das Einteilchenmodell findet Moskowski 18)

$$B(E\lambda) = \frac{1}{4\pi} e^2 \left[ \frac{3}{3+\lambda} R_0^{\lambda} \right]^2 \cdot S(I_i, \lambda, I_f)$$
 (2.15)

im Fall eines elektrischen Übergangs und

$$B(M\lambda) = \frac{\lambda^2}{4\pi} \left(\frac{e\hbar}{2Mc}\right)^2 \left(g_S - \frac{2}{\lambda+1}g_\lambda\right)^2 S(I_i, \lambda, I_f)$$
 (2.16)

für einen magnetischen Übergang. Der statistische Faktor  $S(I_i, \lambda, I_f)$  ist von der Grössenordnung eins und wird deshalb für diese Abschätzung vernachlässigt; ebenso das gyromagnetische Verhältnis des Bahndrehimpulses  $g_{\lambda}$  gegenüber dem des Protons  $g_{S}$ .

Bei der Zweiquantenemission ist in

$$\mid \langle i \mid \mathfrak{M} \ (1) \mid z \rangle \langle z \mid \mathfrak{M} \ (2) \mid f \rangle \mid^{2}$$

die Winkelverteilung implizite enthalten. EICHLER und JACOB<sup>11</sup>) haben diese berechnet. Für unsere Abschätzung wird eine isotrope Winkelverteilung angenommen; statistische Faktoren werden wieder gleich eins gesetzt. Es ergibt sich aus (2.15) und (2.16)

$$\frac{\mid \langle i \mid \mathfrak{M} \ (1) \mid z \rangle \langle z \mid \mathfrak{M} \ (2) \mid f \rangle \mid^{2}}{\mid \langle i \mid \mathfrak{M} (M \ \lambda) \mid f \rangle \mid^{2}} = \frac{e^{2}}{4 \pi} \cdot \frac{\left(\frac{3}{3 + \lambda_{1}}\right)^{2} \left(\frac{3}{3 + \lambda_{2}}\right)^{2} \lambda^{2}(M)}{\lambda^{2} \left(\frac{3}{3 + \lambda}\right)^{2}} \frac{K(1) \cdot K(2)}{K(M \ \lambda)}$$

 $\lambda(M)$  ist die Multipolordnung des magnetischen unter den beiden Übergängen. Die K sind empirische Korrekturfaktoren, sie sollen berücksichtigen, wie stark das Einteilchenmodell von der Erfahrung abweicht. Wenn für die Energie des Zwischenzustands wieder  $\omega_z - \omega_f = 3$  ( $\omega_i - \omega_f$ ) eingesetzt wird, so folgen die numerischen Verhältnisse der Tabelle 2.

<sup>\*)</sup> Ba<sup>137</sup> hat 81 Neutronen, also magische Zahl minus 1. In der Systematik der Gamma-Zerfälle ist aber kein Unterschied zwischen Neutron oder Proton als «Leuchtnukleon» zu finden.

Tabelle 2

Art des Übergangs	$T^{(1)}:T^{(2)}$	$\begin{array}{ c c }\hline K(1) \cdot K(2) \\\hline K(M4) \end{array}$
E2 + M2 $M2 + E2$	$ \begin{vmatrix} 3.6 \cdot 10^{-5} \\ 8.1 \cdot 10^{-5} \end{vmatrix} \frac{K(E2) \cdot K(M2)}{K(M4)} $	10
E1 + M3 $M3 + E1$	$ \begin{array}{c c} 4,6 \cdot 10^{-3} \\ 1,1 \cdot 10^{-2} \end{array} \begin{array}{c} K(E1) \cdot K(M3) \\ \hline K(M4) \end{array} $	10-4
E3 + M1 $M1 + E3$	$ \begin{array}{c c} 5,3 \cdot 10^{-5} \\ 1,1 \cdot 10^{-4} \end{array} \begin{array}{c} K(E3) \ K(M1) \\ \hline K(M4) \end{array} $	10-4

Es zeigt sich, dass auf die numerische Berechnung des Integrals in Gleichung (2.10) nicht verzichtet werden durfte, unterscheiden sich doch die Zahlenfaktoren des Verhältnisses  $T^{(2)}$ :  $T^{(1)}$  ganz erheblich.

# 3. Das Experiment

- a) Prinzip. Die Unterscheidung der aus der Zweiquantenemission folgenden Photonen von allen anderen ist durch zwei Merkmale möglich: Gleichzeitigkeit und Energieverteilung. Beide Kriterien wurden bei der vorliegenden Messung verwendet. Wegen des Untergrundes von kosmischer Strahlung und zufälligen Koinzidenzen musste die Messung der Zweiquantenemission mit einer Kontrollmessung verglichen werden. Für diese wurde je ein  $\gamma$ -Spektrum von gleicher Intensität und aus gleichartigen Quellen auf jeden Detektor gegeben, so dass die gleiche Anzahl und die gleiche Energieverteilung von Untergrund-Koinzidenzen wie im Fall der eigentlichen Messung zu erwarten war.
- b) Quellen und geometrische Anordnung. Das Cs<sup>137</sup> für die drei Quellen konnte vom A. E. R. E., Harwell bezogen werden. Nach der Art der Herstellung\*) sollte die darin enthaltene Aktivität von Cs<sup>134</sup> nicht mehr als <sup>1</sup>/<sub>50 000</sub> der Cs<sup>137</sup>-Aktivität betragen, was sich im Verlauf der Messung auch bewahrheitete.

Die geometrische Anordnung von Quellen und Detektoren ist aus der Figur 2 ersichtlich. Die beiden NaJ-Kristalle von  $1^3/4''$  Durchmesser und  $1^1/2''$  Länge waren in vertikaler Richtung durch 10 cm, in horizontaler durch 5 cm Blei abgeschirmt. Ein automatischer Präparatwechsler sorgte dafür, dass sich «Messung» und «Kontrollmessung» abwechslungsweise folgten. Er plazierte die Quellen mit grosser Genauigkeit abwechslungsweise an die in Figur 2 dargestellten Stellen. Während eines Wechsels wurden die Zähler umgeschaltet und die Kamera transportierte ein Bild weiter.

<sup>\*)</sup>  $Cs^{137}$  und  $Cs^{133}$  entstehen als Zerfallsprodukte bei Bestrahlung von Uran mit Neutronen,  $Cs^{134}$  durch n-Einfang aus  $Cs^{133}$ . Der Gehalt an  $Cs^{134}$  steigt demnach quadratisch mit der Bestrahlungsdauer.

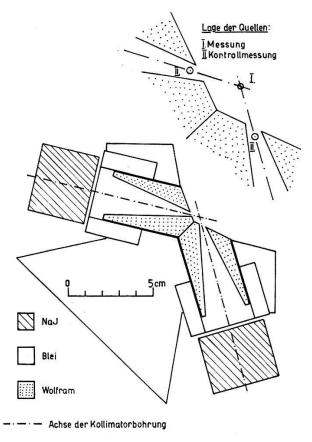


Fig. 2 Anordnung der Quellen und Detektoren

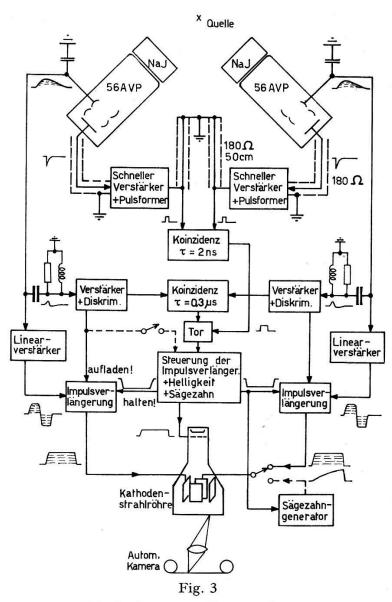
c) Elektronische Apparaturen. Die Auswahl der koinzidenten Ereignisse und die gleichzeitige Aufzeichnung der Impulsamplitude aus beiden Detektoren erfolgte entsprechend dem Funktionsschema Figur 3. Es handelt sich dabei um die übliche «fast-slow»-Koinzidenztechnik. Die beiden Impulshöhen wurden photographisch registriert <sup>19</sup>). Die Auslenkung des Leuchtflecks auf einer Kathodenstrahlröhre in zwei Dimensionen ist jeweils den beiden Impulsamplituden proportional. Bei Umschaltung auf die in Figur 3 gestrichelt eingezeichneten Verbindungen arbeitet die Anlage als Graukeil-Spektrograph.

Weil bei diesem Experiment die erwartungsgemäss seltenen Ereignisse der Zweiquantenemission aus sehr vielen anderen herausgesucht werden mussten, sollte die Messapparatur etwas höheren Anforderungen genügen, als sonst vielleicht üblich. Diese Anforderungen sind:

Hohe Koinzidenzauflösung ohne Verluste.

Sichere Diskriminierung der Störimpulse (thermische Elektronenemission an der Photokathode und elektrische Störungen).

Keine Beeinflussung der Energiemessung durch vorausgegangene Detektorimpulse.

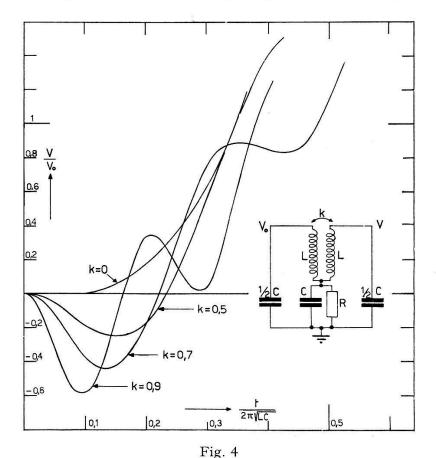


Blockschema zur Messanordnung

Grosse Stabilität und Betriebssicherheit wegen der langen Dauer der Messung.

1. Koinzidenzmessung. Der verwendete NaJ-Szintillator gibt eine relativ gute Energieauflösung, andererseits erschwert er aber wegen seiner langen Leuchtdauer eine Koinzidenzmessung mit hoher Zeitauflösung. Man kann erwarten, dass ein Lichtimpuls, der durch 100 keV Elektronenenergie im Szintillator erzeugt wird, an der Photokathode ca. 100 Elektronen auslöst. Das ergibt bei einer Abklingdauer des Szintillators von  $\tau=0.25~\mu{\rm sec}$  im Mittel 0,8 Elektronen während der ersten 2 nsec, in denen das Signal für die Koinzidenz erzeugt werden sollte. Man könnte innerhalb dieser Zeit ein solches Ereignis also nicht von einem thermisch erzeugten Elektron unterscheiden. Für eine solche Unterscheidung muss

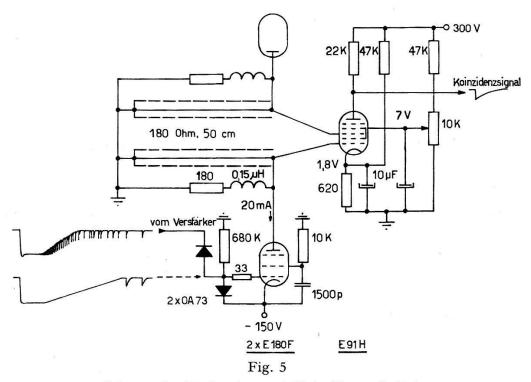
man also etwas länger warten, nämlich solange, bis ein gewisser Schwellenwert überschritten ist, der mehr als einem Elektron entspricht. Damit nimmt man aber eine Verzögerung der kleinen Detektorimpulse gegenüber den grossen in Kauf. Die Impulse von der Anode des Photo-Elektronenvervielfachers wurden deshalb zunächst auf einen «schnellen» Verstärker (siehe Fig. 3) gegeben, der mit einer gewissen Impulsumformung dafür sorgt, dass diese Verzögerungen nicht allzu gross werden.



Berechnete Übertragungseigenschaften des Kopplungsnetzwerks (Dämpfung vernachlässigt)

Dieser Verstärker ist eine leichte Modifikation einer schon beschriebenen Schaltung <sup>20</sup>). Er verstärkt mit 4 Röhren 30fach, die Arbeitswiderstände im Kopplungsglied (siehe Fig. 4) haben 220 Ohm, die Selbstinduktionen 0,07  $\mu$ Hy. Die in Figur 4 dargestellte berechnete Übertragungsfunktion dieses Kopplungsgliedes, das sich zwischen einer Anode und dem Gitter der nachfolgenden Röhre befindet, konnte an einem Modell mit grösseren Werten für L und C verifiziert werden. Im praktisch verwendeten Fall ist die Einheit des Zeitmaßstabes  $2\pi\sqrt{L\cdot C}=4,5\cdot 10^{-9}$  sec, und k=0,7, der Nulldurchgang der Funktion ist dann bei  $t=10^{-9}$  sec. Die beschriebenen Übertragungseigenschaften ergeben eine impulshöhenunabhängige Verzögerung und einen steileren Anstieg der Signalflanke als von einem

rein Ohmschen Verstärker zu erwarten wäre, wodurch die Zeitverzögerung der kleinen Impulse etwas herabgesetzt wird. Der Verstärker wird in praktisch jedem Fall übersteuert, so dass an seinem Ausgang ein normalisierter negativer Impuls resultiert; die Übersteuerung hinterlässt keine merklichen Nachwirkungen.



Schema der Endstufen und Koinzidenzschaltung

Die Schaltung der Endstufen und der Koinzidenzmischung ist in Figur 5 dargestellt. Das Netzwerk mit den Dioden in der Gitterleitung der Endstufen trägt weitgehend der zweiten, oben aufgestellten Forderung Rechnung. Der Stromimpuls an der Anode des Photo-Elektronenvervielfachers besteht eigentlich aus einzelnen Stössen, die je von einem an der Kathode ausgelösten Elektron erzeugt werden. Diese haben einen zeitlichen Verlauf in Form einer Gaußschen Glockenkurve, die durch die Eigenschaften des Elektronenvervielfacher-Systems gegeben ist\*). Die Häufigkeit dieser Stösse folgt einem Exponentialgesetz (Abklingen des Szintillatorleuchtens). Es könnte nun der Fall eintreten, dass zwei zeitlich nahe zusammenfallende Detektorimpulse zwar zunächst keine «schnelle» Koinzidenz, sondern nur eine «langsame» auslösen. Unter den während des Abklingens des Szintillatorleuchtens häufigen Ein-Elektronenstössen kann aber mit relativ grosser Wahrscheinlichkeit eine zufällige «schnelle» Koinzidenz auftreten, so dass dieses Ereignis schliesslich

<sup>\*)</sup> Die Gauss-Verteilung hat eine Halbwertsbreite von 2 nsec für die 56AVP. Die ursprünglich verwendeten RCA 6810 konnten nicht befriedigen.

registriert würde. Daraus könnte eine höhere effektive Frequenz der zufälligen Koinzidenzen resultieren, als der hohen Koinzidenzauflösung entspricht. Die Impulsverlängerung durch das genannte Netzwerk schneidet nun diese Ein-Elektronenstösse weitgehend ab, zudem ist die Verstärkung so eingestellt, dass auch deren Amplitude zum Auslösen des Koinzidenzsignals nicht ganz ausreicht.

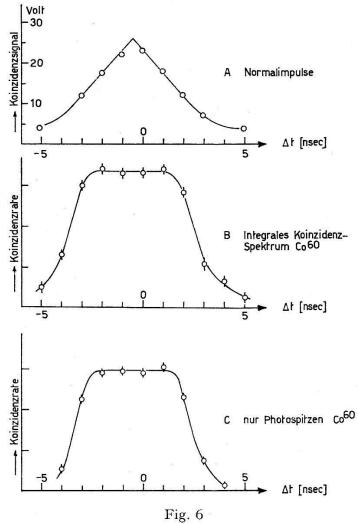
Die Koinzidenzmischung besorgt eine konventionelle Mehrgitterröhre (E91H), deren Schirmgitterspannung aber so tief eingestellt ist (+ 5 V) dass sie mit – 1,8 V auf nur einem Steuergitter praktisch gesperrt ist. Es fliesst ca. 1 mA Anodenstrom während der Zeit, in der beide Steuergitter geöffnet sind. Dadurch wird das Signal an der Anodenkapazität der Mischröhre genau dieser Zeit proportional. Es wird noch 300fach verstärkt und zur Diskriminierung auf eine Schmitt-Triggerstufe gegeben.

Diese für das vorliegende Experiment entwickelte Koinzidenzschaltung ist schon früher in einem anderen Zusammenhang beschrieben worden <sup>21</sup>).

Das Ergebnis des Experiments hängt ganz wesentlich von den Eigenschaften der Koinzidenzapparatur ab; diese ist deshalb zu Beginn der Messungen eingehend geprüft worden, sie wurde auch während der Dauer der Messung periodisch kontrolliert. Ein bequemes Mittel dazu ist die Untersuchung des verstärkten Signals von der Anode der Mischröhre. Die direkte Messung der Anstiegszeit des «schnellen» Verstärkers wäre mit erheblichen Schwierigkeiten verbunden, mit Hilfe des genannten Signals kann aber leicht verifiziert werden, dass sie kleiner als 1 nsec ist: die Anstiegszeit der durch kurzgeschlossene Kabel erzeugten Rechteckimpulse muss kleiner sein als die Dauer der Rechtecke, solange das Koinzidenzsignal dieser Dauer proportional ist. Eine angenäherte Proportionalität konnte, bei optimaler Einstellung der Kapazitäten C in den Kopplungsgliedern (siehe Fig. 4), bis auf 2 nsec herunter nachgewiesen werden. Wurden dagegen die Impulse am Eingang der beiden «schnellen» Verstärker um eine bekannte Zeit  $\Delta t$  gegeneinander verschoben, so konnte die Kurve A der Figur 6 gemessen werden. Durch Einstellen der Diskriminatorschwelle auf einer bestimmten Höhe dieser dreiecksähnlichen Kurve kann die Koinzidenzbreite festgesetzt werden. Es zeigte sich, dass diese Schaltung ohne weiteres eine Koinzidenzauflösung von < 1 nsec gestattet.

Die von 2 koinzidenten  $\gamma$ -Quanten ausgelösten Detektorimpulse haben entsprechend ihrer Grösse und den Eigenschaften des Elektronenvervielfacher-Systems eine gewisse zeitliche Streuung. Diese kann wieder untersucht werden, indem man die einen Detektorimpulse gegenüber den andern um eine Zeit  $\Delta t$  verzögert und die Koinzidenzrate misst. Figur 6B zeigt das Resultat für das integrale Spektrum von Co<sup>60</sup>-Koinzidenzen,

Figur 6C die gleiche Grösse nur für die in die Photospitzen fallenden Impulse. Aus Figur 6C ist ersichtlich, dass für solche Detektorimpulse, die in einen schmalen Amplitudenbereich fallen, eine effektive Koinzidenzauflösung von 2 nsec ohne wesentliche Verluste erzielt werden kann. Bei Zulassung von Impulsen stark variabler Grösse muss diese Zeit allerdings auf den Wert von ca. 5 nsec (siehe Fig. 6B) vergrössert werden.



Verhalten der Koinzidenzanlage bei zeitlicher Verschiebung der Detektorimpulse bzw. Normalimpulse

2. Energiemessung. Es wird die simultane Aufzeichnung der in beiden Detektoren gemessenen  $\gamma$ -Energie benötigt, aber nur dann, wenn die beiden  $\gamma$ -Quanten in Koinzidenz sind. Die Feststellung der Koinzidenz beansprucht eine gewisse Zeit. Deshalb passieren zunächst alle Impulse den Linearverstärker und lösen von einem gewissen Schwellenwert an die Aufladung der Impulsverlängerungsstufe (siehe Fig. 3) aus. Damit unter allen Umständen die Energie richtig gemessen wird, müssen deshalb sowohl der Linearverstärker als auch die Impulsverlängerungs-Stufe gegenüber Überlagerungen gesichert sein.

Der Linearverstärker ergibt ausser der notwendigen Verstärkung eine Umformung und Begrenzung, welche Überlagerungen weitgehend ausschliessen. Die Impulse aus dem Detektor haben je einen exponentiellen Anstieg und Abfall mit Zeitkonstanten von 0,25 bzw. 10 µsec. Am Ausgang des Linearverstärkers sind sie auf ein positives, gefolgt von einem negativen Rechteck umgeformt und erreichen nach 2,6 µsec wieder exakt die Nullage. Die Vorteile dieser Impulsform sind schon öfters beschrieben worden<sup>22</sup>), sie bestehen hauptsächlich darin, dass der Messimpuls während einer kurzen Zeit annähernd konstant bleibt und keine niederfrequente Komponente enthält. Im hier verwendeten Verstärker sorgt eine spezielle Kompensationsschaltung dafür, dass die Impulse ein ebenes Dach besitzen (Korrektur des 10 µsec-Abfalls am Eingang). Ausserdem wird im Falle einer Übersteuerung die Ausgangsamplitude scharf auf ca. 100 V begrenzt; merkliche Nachwirkungen bleiben auch dann keine zurück. Die Abweichungen von der integralen Linearität sind für Ausgangsimpulse zwischen 0 und 95% der maximalen Amplitude stets kleiner als 0,25%. Auch bei höchsten Stosszahlen (bis 2.10<sup>5</sup> sec<sup>-1</sup>) treten keine anderen unerwünschten Effekte als die statistisch zu erwartenden Überlagerungen auf.\*)

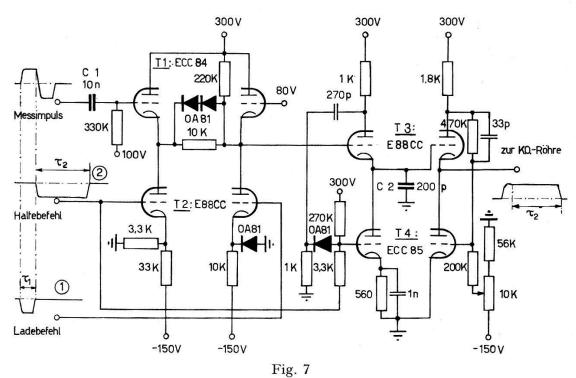
3. Impulsverlängerung. Schaltungen zur Verlängerung von Messimpulsen treten in irgend einer Form in jedem Impulsspektrometer auf. MAEDER<sup>19</sup>) hat die an einen solchen Apparat gestellten Anforderungen ausführlich untersucht und eine Schaltung für eine Ladestufe mit Kathodenfolger vorgeschlagen. Dieses Prinzip wurde hier verwendet. Die Schaltung konnte noch wesentlich vereinfacht und für kürzere Auf- und Entladungszeiten ausgelegt werden (Fig. 7).

Dank der symmetrischen Impulsform am Eingang ist keine Aufladung des Kondensators  $C_1$  zu befürchten, solange die linke Hälfte der Röhre  $T_1$  keinen Gitterstrom zieht. Um dies zu verhüten, wird im Falle des Speicherns durch einen Impuls am linken Gitter von  $T_2$  der Ruhestrom von  $T_1$  abgestellt. Die nachfolgende Schaltung ist durchgehend gleichstromgekoppelt.

Die Speicherkapazität  $C_2$  kann nur aufgeladen werden, wenn der Steuerimpuls  $\bullet$  die Kathode der rechten Hälfte von  $T_1$  freigibt. Dieser Steuerimpuls der Dauer  $\tau_1$  steht zum Messimpuls in festem zeitlichem Verhältnis. Während  $\tau_1$  entscheiden die beiden Koinzidenzmischungen über die Verwertung des Impulses, ist der Entscheid positiv, so löst die Rückflanke von  $\bullet$  den Steuerimpuls  $\bullet$  aus, und die an  $C_2$  liegende Meßspannung wird bis zum Ende von  $\tau_2$  gespeichert. Während  $\tau_2$  sind all-

<sup>\*)</sup> Siehe auch: W. Beusch und R. Müller, «Ein überlastbarer Verstärker für hohe Impulsfrequenzen». Erscheint in Helv. Phys. Acta (Frühjahrstagung 1960 der SPG).

fällige Aufladebefehle  $\bullet$  unterdrückt. Das Netzwerk mit der Diode am linken Gitter von  $T_3$  bewirkt ein rascheres Entladen von  $C_2$  beim Ausbleiben des Haltebefehls  $\bullet$ . Der Ausgang geht direkt auf die eine Ablenkplatte der Kathodenstrahlröhre und über eine Umkehrstufe sym-

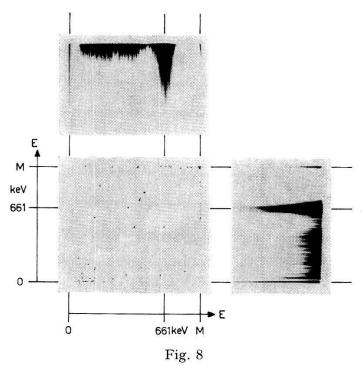


Schema zur Impulsverlängerungsschaltung

metrisch auf die andere Ablenkplatte. Es ist keine wesentliche Entladung von  $C_2$  während 100  $\mu$ sec festzustellen. Anfänglich bereitete allerdings der Gitterstrom (bei negativer Gittervorspannung) in der rechten Hälfte von  $T_3$  gewisse Schwierigkeiten, handelt es sich doch um Ströme von der Grössenordnung 0,1  $\mu$ A.

4. Speicherung der Information. Synchron mit dem Haltesignal wird die Kathodenstrahlröhre (5 ABP 1) hellgesteuert. Der Leuchtfleck wird durch die verlängerten Messimpulse in horizontaler und vertikaler Richtung ausgesteuert und festgehalten. Der Verschluss einer automatischen Kamera ist während der Dauer einer Messung ständig offen, so dass der Film jede Koinzidenz dauerhaft festhält. Es geht keinerlei Information über Koinzidenzen verloren. Sollten durch irgendwelche Störungen unerwünschte Nebeneffekte auftreten, so werden auch diese registriert und können so untersucht und beseitigt werden. Trotz zahlreicher Störquellen im Phys. Institut der ETH konnten nie irgendwelche «falschen» Signale festgestellt werden.

Eine einzelne Aufnahme dauerte jeweils 3 Stunden. Die Kamera wurde von der weiter oben beschriebenen Automatik gesteuert. Nach 24 Stunden Dauerbetrieb wurden jeweils zur Kontrolle des Energiemaßstabes die von den beiden Detektoren gelieferten Einzelspektren aufgenommen. Dazu wurde der Koinzidenzspektrograph durch einfache Umschaltungen (siehe Fig. 3) als Graukeilspektrograph verwendet. Figur 8 zeigt ein Beispiel der so erhaltenen Bilder.



Koinzidenzspektrum und Energieeichung

Dauer der Koinzidenzmessung 3 Stunden, Belichtungsdauer für einen Punkt 0,1 msec. Bei den Koinzidenzen auf den Geraden M ist der Verstärker übersteuert. Die Einzelspektren sind mit der gleichen Belichtungsdauer pro Ablenkung aufgenommen; sie enthalten nur 5000 Impulse.

## 4. Auswertung und Korrekturen

a) Auswertemethode. Die Auswertung der ca. 1000 Aufnahmen von der Art der Figur 8 musste visuell vorgenommen werden. Dazu wurden die Filmnegative auf eine Mattscheibe projiziert. Die von je einer Koinzidenz erzeugten Punkte wurden nach ihrer Lage im Koordinatensystem in horizontaler und vertikaler Richtung in 8 Kanäle aufgeteilt, die einem Energieintervall von 90 bzw. 180 keV entsprachen. Die Grenzen dieser Kanäle wurden derart zwischen die auftretenden γ-Linien angelegt, dass zwischen den zufälligen Koinzidenzen aus dem Cs<sup>137</sup>-Einquantenzerfall und den wahren Koinzidenzen aus eventuell in der Quelle vorhandenem Cs<sup>134</sup> möglichst gut unterschieden werden konnte (siehe Fig. 13). Das Raster wurde jeweils nach den Photospitzen in den beiden Einzelspektren angepasst. Da sich auf dem Film «Messung» und «Kontrollmessung» abwechslungsweise folgten, sollten sich apparative Schwankungen im Mittel herausheben.

Die Resultate dieser Auswertung wurden nach folgenden Gesichtspunkten analysiert:

Statistik der Schwankungen zur Kontrolle der Apparatur.

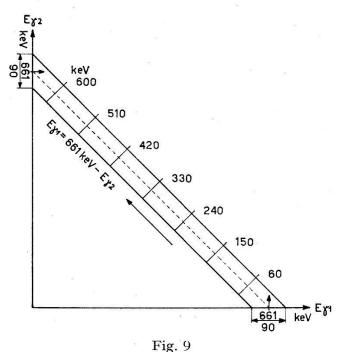
Zahl und Verteilung der zufälligen Koinzidenzen zur experimentellen Bestimmung der effektiven Koinzidenzauflösung.

Differenz zwischen «Messung» und «Kontrollmessung» zur Bestimmung der Korrekturen (Cs<sup>134</sup>-Koinzidenzen und eventuell andere).

Für die Auszählung der für die Zweiquantenemission in Frage kommenden Ereignisse, die ja die Energiebeziehung (2.7), d. h.

$$E_{\gamma 1} + E_{\gamma 2} = E_{\gamma} = 661 \text{ keV}$$
 (4.1)

erfüllen, wurde das Raster von Figur 9 verwendet, da in der groben Einteilung der Fig. 13 die relativ gute Energieauflösung der Apparatur verloren gegangen wäre.



Raster zur Auszählung der Zweiquanten-Koinzidenzen

b) Zufällige Koinzidenzen. Die Verteilung der zufälligen Koinzidenzen wurde anhand der mit einem 64-Kanal-Impulsanalysator gemessenen Spektren aus den beiden Detektoren berechnet. Für die experimentelle Bestimmung wurde der Nulleffekt der Koinzidenzen während 276 Stunden gemessen und die Differenz zwischen «Kontrollmessung» und Nulleffekt gebildet. Die so erhaltene experimentelle Verteilung stimmte mit der berechneten innerhalb des statistischen Fehlers überein, wenn für die Frequenz der zufälligen Koinzidenzen

$$n_{zui} = 140/100 h$$

eingesetzt wird. Mit diesem Wert, und mit Hilfe der in den beiden Detektoren gezählten Impulsfrequenzen von  $n_1 = 264 \text{ sec}^{-1}$  und  $n_2 = 250 \text{ sec}^{-1}$  berechnet sich die effektive Koinzidenzdauer  $2\tau$ :

$$2\tau = \frac{n_{zuf.}}{n_1 \cdot n_2} = 5.5 \cdot 10^{-9} \text{ sec}$$
 (4.2)

Die Übereinstimmung des hier berechneten Wertes von  $2\tau$  mit dem aus Fig. 6B abzulesenden gibt Gewähr für ein richtiges Funktionieren der Koinzidenzmessung. Die Anzahl der zufälligen Koinzidenzen muss für die Korrektur der Zweiquanten-Messwerte nicht herangezogen werden, da sie ja durch die Differenzbildung mit der «Kontrollmessung» herausfällt.

c) Koinzidenzen aus Verunreinigungen der Quelle. Als hauptsächliche Verunreinigung der Quelle ist eine Beimischung von Cs<sup>134</sup> zu erwarten. Dieses hätte dann bei der Herstellung der Quelle in grösserer Menge entstehen können, wenn das bestrahlte natürliche Uran eine relativ kleine Menge von Cs<sup>133</sup> enthalten hätte.

Zur Bestimmung der Cs¹³⁴-Aktivität wurden die Koinzidenzen gesucht, die einer 797–605-keV-Kaskade zugeschrieben werden können. Von allen γ-Quanten, die von Cs¹³⁴ emittiert werden, gehören ca. 90% dieser Kaskade an. Die Trennung dieser Koinzidenzen von den zufälligen und den durch Zweiquantenemission erzeugten ist glücklicherweise deshalb möglich, weil eine grössere Energie dabei beteiligt ist. Ihre Verteilung wurde aus den gemessenen Einzelspektren berechnet. Sie ist in Figur 10 dargestellt, desgleichen in Klammern die experimentell bestimmte Verteilung.

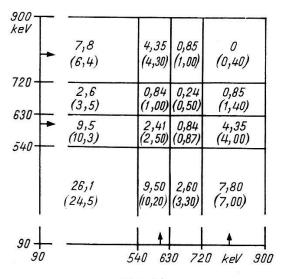


Fig. 10 Koinzidenzspektrum des Cs<sup>134</sup>

Die eingetragenen Zahlen sind die berechneten prozentualen Anteile pro Feld. Die eingeklammerten Zahlen sind experimentelle Werte. Die Pfeile geben die Lage der beiden intensivsten Gamma-Linien

Weil dabei aber nicht genau die gleiche geometrische Anordnung erreicht werden konnte, werden die berechneten Werte als zuverlässiger angesehen.

Die Differenz zwischen «Messung» und «Kontrollmessung» in geeigneten Gebieten der zweidimensionalen Verteilung kann nun mit den Werten der Figur 10 verglichen werden. Der statistische Fehler dieser Differenzen ist ziemlich gross (siehe Fig. 13). Ein gewogener Mittelwert gibt für die totale Zahl der Cs<sup>134</sup>-Koinzidenzen

$$n_{134} = (50 \pm 20)/100 h \tag{4.3}$$

Aus dieser Zahl und der Verteilung der Koinzidenzen berechnet man für ein Feld von 90 × 90 keV in der Umgebung der Geraden (4.1), auf der die Koinzidenzen aus einem Zweiquantenzerfall liegen, im Mittel eine Anzahl

$$n_{134}^{\square} = (0.52 \pm 0.205)/100 h$$
 (4.4)

d) Abschätzung der Bremsstrahlungseffekte. Bei den ersten Versuchen befand sich die Quelle in einem 0,7 mm starken Glasröhrchen. Dabei konnte in einem Gebiet  $E\gamma_1 + E\gamma_2 < 100$  keV ein deutlicher Effekt festgestellt werden, der nur durch eine zweimalige Emission von Bremsquanten durch ein  $\beta$ -Teilchen aus der Quelle erklärt werden konnte. Bei der später verwendeten dünneren Quelle (ca. 0,5 mm CsCl auf 0,05 mm Ni-Folie) verminderte sich dieser Effekt erwartungsgemäss. Es zeigte sich immerhin die Notwendigkeit, die Häufigkeit solcher Prozesse abzuschätzen.

Es sei  $\Phi(\gamma, \varepsilon)d\gamma$  der Wirkungsquerschnitt für den Prozess, dass ein Elektron der Energie  $\varepsilon$  ein Quant im Energiebereich  $\gamma \dots \gamma + d\gamma$  emittiert. Die Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein Elektron der Anfangsenergie  $\varepsilon_0$  längs seines Weges ein Photon im gleichen Energiebereich aussendet, ist dann

$$dW(\gamma, \varepsilon_0) = d\gamma N_0 \int_0^{x (\varepsilon - \gamma)} \Phi(\gamma, \varepsilon) dx = d\gamma N_0 \int_{\varepsilon_0}^{\gamma} \Phi(\gamma, \varepsilon) \frac{dx}{d\varepsilon} \cdot d\varepsilon \qquad (4.5)$$

worin  $N_0$  die Anzahl Atome/cm³ und  $dx/d\varepsilon$  der reziproke spezifische Energieverlust sind. Für die Emission von zwei Photonen muss entsprechend der Figur 11 zweimal integriert werden.

$$d^2W(\gamma_1\gamma_2\varepsilon_0) = d\gamma_1 d\gamma_2 N_0^2 \int_{\varepsilon_0 - \gamma_0}^{\gamma_2} \left(\frac{dx}{d\varepsilon} \Phi(\gamma_1, \varepsilon + \gamma_1) \int_{\varepsilon}^{\gamma_2} \frac{dx}{d\varepsilon'} \Phi(\gamma_2, \varepsilon') d\varepsilon'\right) d\varepsilon \quad (4.6).$$

Die Lösung dieser mehrfachen Integrale mit numerischen Methoden wäre sehr umständlich. Es wurden deshalb die Grössen  $\Phi(\gamma, \varepsilon)^{23}$ ) und  $dx/d\varepsilon^{24}$ ) durch einfache analytische Funktionen approximiert:

$$\Phi(\gamma, \varepsilon) = \overline{\Phi} \cdot \left(\frac{1}{\gamma} - \frac{1}{\varepsilon}\right)$$

$$\frac{dx}{d\varepsilon} = 0,22 \frac{g}{cm \cdot mc^2}$$
(4.7)

darin bedeuten

$$\overline{\Phi} = 21 \, \frac{Z \, r_0^2}{137}$$

wenn  $\gamma$  und  $\varepsilon$  in  $mc^2$  gemessen sind und  $r_0$  der klassische Elektronenradius ist.

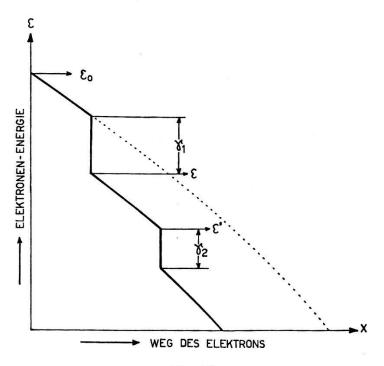


Fig. 11
Zur Berechnung der Bremsstrahlungseffekte

Wenn (4.7) in (4.6) eingesetzt wird, so tritt bei der zweiten Integration ein Term der Form

$$\int \frac{\ln x}{x+a} dx = D_2 \quad D_2$$
: Dilogarithmus

der nicht in geschlossener Form berechnet werden kann. Für  $\varepsilon \geqslant \gamma_2$  gilt die Näherung

$$\frac{\varepsilon - \gamma_2}{\gamma_2} - \ln \varepsilon \simeq \frac{\varepsilon - \gamma_2}{\gamma_2} \left( 1 - \frac{\gamma_2}{\varepsilon} \right)$$

mit der das doppelte Integral dann schliesslich ausgerechnet werden kann. Diese Näherungen können unter gewissen Umständen einen merklichen Fehler einführen, die Abschätzung liefert aber in jedem Fall einen zu grossen Wert.

Das Integral (4.6) ergibt ausgerechnet

$$d^{2}W \left(\gamma_{1} \gamma_{2} \varepsilon_{0}\right) = d\gamma_{1} d\gamma_{2} N_{0}^{2} \overline{\Phi}^{2} \left(\frac{dx}{d\varepsilon}\right)^{2} \frac{(\gamma_{1} + \gamma_{2})^{2}}{\gamma_{1} \gamma_{2}} \left[\frac{1}{2} \frac{\varepsilon_{0}^{2}}{(\gamma_{1} + \gamma_{2})^{2}} - 2 \frac{\varepsilon_{0}}{\gamma_{1} + \gamma_{2}} + \frac{3}{2} + \ln \frac{\varepsilon_{0}}{\gamma_{1} + \gamma_{2}}\right] = d\gamma_{1} d\gamma_{2} N_{0}^{2} \overline{\Phi}^{2} \left(\frac{dx}{d\varepsilon}\right)^{2} \frac{(\gamma_{1} + \gamma_{2})^{2}}{\gamma_{1} \gamma_{2}} \cdot F\left(\frac{\varepsilon_{0}}{\gamma_{1} + \gamma_{2}}\right)$$
(4.8)

Weil sich die Integration über den ganzen Bereich von  $\varepsilon$  erstreckte, ist also für die Rechnung angenommen, dass das Elektron in der Quelle vollständig gebremst wird.

Vom grössten Interesse ist die Verteilung der zweifachen Bremsquanten in der Umgebung der Geraden (4.1). Man kann deshalb  $\gamma_1 + \gamma_2 = \gamma$  setzen und über  $\gamma_2$  integrieren.

$$dW\left(\gamma_{1}\,\varepsilon_{0}\right) = d\gamma \cdot N_{0}^{2}\,\overline{\varPhi}^{2}\left(\frac{dx}{d\varepsilon}\right)^{2}\,F\left(\frac{\varepsilon_{0}}{\gamma}\right)\,\cdot\,\gamma\left[\ln\frac{\gamma_{1}}{\gamma - \gamma_{1}}\right]_{\gamma_{1} = 0}^{\gamma_{1} = \gamma}$$

Das Integral divergiert logarithmisch ( $\Phi$  ( $\gamma$ ,  $\varepsilon_0$ ) divergiert wie  $1/\gamma$ ). Weil die weichen Bremsquanten nicht interessieren, kann man die Grenzen, in Übereinstimmung mit der Auswertung (siehe Fig. 9) so festsetzen, dass Bremsquanten einer Energie  $\gamma_{1,2} < 60$  keV nicht berücksichtigt sind. Man erhält dann das in Figur 12 dargestellte Resultat. Der Parameter  $\gamma$ 

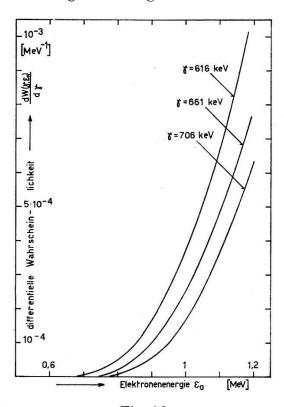


Fig. 12

Wahrscheinlichkeit für die Emission von 2 Bremsquanten Ein Elektron, das anfänglich die Energie  $\varepsilon_0$  besitzt, soll längs seines Weges nacheinander zwei Quanten der Energie  $\gamma_1$  bzw.  $\gamma_2$  emittieren. Kurvenparameter ist die Summe  $\gamma = \gamma_1 + \gamma_2$ . Die Energie eines Bremsquants soll je ja grösser als 60 keV sein.

ist die Summe der Energien der beiden Bremsquanten; es wurden gerade die Grenzen und die Mittellinie des zur Auswertung verwendeten Streifens (Fig. 9) für  $\gamma$  eingesetzt.

Es kann nun über ein Gebiet G der Energieverteilung mit den Grenzen

$$60 \text{ keV} \leqslant \gamma_1 \leqslant \gamma - 60 \text{ keV}$$

$$661-45 \text{ keV} = \gamma = 661 + 45 \text{ keV}$$

numerisch integriert werden. Die so erhaltene Wahrscheinlichkeit pro Elektron der Energie  $\varepsilon_0$  wird noch mit der relativen Häufigkeit der Energie  $\varepsilon_0$  multipliziert, die durch das  $\beta$ -Spektrum ( $\Delta I=2$ , «yes»,  $T_0=1,18~{\rm MeV}$ ) gegeben ist. Eine weitere numerische Integration liefert schliesslich die Wahrscheinlichkeit dafür, dass ein Elektron aus dem genannten  $\beta$ -Zerfall zwei Bremsquanten emittiert, die in das für die Zweiquantenemission interessante Energiegebiet G fallen:

$$W(G) = 1.7 \times 10^{-6} \tag{4.9}$$

Nun zerfällt aber Cs<sup>137</sup> nur zu ca. 8% direkt in den Grundzustand, was zu einem  $\beta$ -Spektrum mit einer Endpunktsenergie von 1,18 MeV Anlass gibt <sup>15</sup>) <sup>25</sup>). Die Wahrscheinlichkeit, dass bei einem Zerfall von Cs<sup>137</sup> zwei Bremsquanten auftreten, die nach ihrer Energie mit einem Zweiquanten-Zerfall verwechselt werden könnten, ist also kleiner als  $2 \times 10^{-7}$ , so dass diese Korrektur hier vernachlässigt werden kann. In einem anderen Fall, wo die  $\beta$ -Teilchen höhere und die  $\gamma$ -Quanten niedrigere Energie hätten, könnte dieser Effekt die Messung der Zweiquanten-Emission allerdings stören.

Weitere Koinzidenzen könnten vom Prozess der inneren Bremsstrahlung, gefolgt von einer gewöhnlichen Bremsquantenemission des austretenden Elektrons, erzeugt werden. Die Bremsquantenemission am  $\beta$ -zerfallenden Kern hat aber eine ähnliche Wahrscheinlichkeit und Energieverteilung wie die Bremsquantenemission längs des Weges des Elektrons <sup>26</sup>). Diese Korrektur fällt deshalb in die gleiche Grössenordnung wie die oben berechnete und wird ebenfalls vernachlässigt.

Die Konversionselektronen geben keinen Beitrag, ebenso die häufigeren  $\beta$ -Zerfälle mit einer maximalen Energie von 520 keV.

e) Compton-Streuung. Die Streuung eines  $\gamma$ -Quants durch Compton-Effekt von einem Szintillationskristall in den anderen könnte zu Koinzidenzen Anlass geben, die zudem noch die Energiebeziehung (4.1) erfüllten, also als Ereignisse der Zweiquanten-Emission gezählt würden. Die Form der Abschirmung und der Winkel zwischen den beiden Detektoren wurden deshalb so gewählt, dass der genannte Prozess mit Sicherheit ausgeschlossen ist. Es ist nämlich im ungünstigsten Fall die Trans-

missionswahrscheinlichkeit durch die Abschirmung für ein Comptongestreutes Quant:

$$W = e^{-\mu L} = 10^{-17}$$

$$(L = 3 \text{ cm in Wolfram}, \mu_W(200 \text{ keV}) = 12 \text{ cm}^{-1})$$

Dieser Effekt erfordert also keine Korrektur.

f) Beiträge einer Kaskade. Wenn der metastabile Zustand des Ba<sup>137</sup> über eine Kaskade zerfallen könnte, so würden die beiden  $\gamma$ -Quanten natürlich auch die Energiebeziehung (4.1) erfüllen; sie wären aber monoenergetisch. Eine solche Kaskade wurde bisher noch nie festgestellt, obwohl FAGG<sup>17</sup>) ein Niveau bei 281 keV gefunden hat. Diese Tatsache kann dadurch erklärt werden, dass dieses Niveau einen Spin I=1/2 besitzt. Ist seine Parität positiv, so ist der  $\gamma$ -Übergang vom Typ E5, ist sie negativ, so ist er vom Typ M5. Das Einteilchenmodell liefert dafür die folgenden Übergangswahrscheinlichkeiten:

$$T(E5) = 8 \cdot 10^{-9} \text{ sec}^{-1}$$
  
 $T(M5) = 1.3 \cdot 10^{-9} \text{ sec}^{-1}$ 

Vergleicht man diese Werte mit der Wahrscheinlichkeit des direkten M4Übergangs in den Grundzustand:

$$T(E5)$$
:  $T(M4) = 2 \cdot 10^{-6}$   
 $T(M5)$ :  $T(M4) = 3 \cdot 10^{-7}$ 

Es ist aber zu erwarten, dass die  $\lambda = 5$ -Übergänge gegenüber dem Einteilchenmodell-Wert noch verlangsamt sind.

Wäre noch ein weiteres Niveau mit  $3/2 \le I \le 11/2$  vorhanden, so wäre eine Kaskade über dieses Niveau wahrscheinlicher als der direkte Übergang und hätte sich damit deutlich bemerkbar machen müssen.

#### 5. Resultate

a) Totales Koinzidenzspektrum. Die Auszählung aller Konzidenzen mit dem Raster der Figur 13 liefert das totale Konzidenzspektrum. Dieses setzt sich zusammen aus dem Nulleffekt, den zufälligen Koinzidenzen der 661-keV-Quanten des Cs¹³7, den  $\gamma$ -Kaskaden aus radioaktiven Verunreinigungen der Quelle, der doppelten Bremsquantenemission, eventuellen weiteren Störprozessen und schliesslich aus den Ereignissen der Zweiquantenemission. Der Nulleffekt wird fast ausschliesslich von koinzidenten Partikeln oder Quanten der kosmischen Strahlung erzeugt. Diese ergeben vorwiegend sehr grosse Detektorimpulse, die den Verstärker übersteuern und deshalb ganz am Rand der Verteilung erscheinen (siehe Fig. 8).

Aus der Differenz zwischen «Kontrollmessung» und Nulleffekt wurde die Zahl der zufälligen Koinzidenzen bestimmt. Die Differenz zwischen «Messung» und «Kontrollmessung» liefert die experimentelle Bestimmung der Korrekturen. In Figur 13 sind diese Differenzen, bezogen auf 100

- 900 keV			6,5 2,4	2	1,4 ±1,0	2,2 ±1,0	2,6 ±1,1	
- 720 661 - 630	5,3 ± 2,5						1,8 ±1,5	-1,4 ±0,9
OPPLICATION OF	0,9 ±1,0	0,4 ±1,1	−0,7 ±1,1	-0,2 ±1,0	1,5 ±1,0	1,3 ±1,0	2,1 ±1,5	2,8 ±1,0
-540	1,5 ±1,1	0,4 ±1,2	1,3 ±1,2	−1,0 ±1,1	-0,7 ±1,2	1,5 ±1,1	2,8 ±2,4	2,9 ±2,6
-450 200	1,9 ±1,0	-1,4 ±1,1	0 ±1,1	-1,2 ±1,0	-1,4 ±1,1	-0,1 ±1,1		
360	1,5 ±1,2	0,2 ±1,2	-0,7 ±1,2	2,0 ±1,0	-0,4 ±1,1	3,4 ±1,1		
- 270	4,9 ±1,5	6,4 ±1,5	2,7 ±1,3	1,1 ±1,3	2,5 ±1,3	1,1 ±1,1		
- 180	7, 6 ±1,8	8,5 ±1,7	-0,2 ±1,4	0,2 ±1,2	1,9 ±1,3	1, 0 ±1, 1		
90		30 27					661 30  7.	20 keV 900

Fig. 13
Totales Koinzidenzspektrum

Die eingetragenen Werte sind die Differenzen zwischen «Messung» und «Kontrollmessung» pro 100 h Messdauer mit dem statistischen Fehler.

Stunden eingetragen. Es handelt sich um die Werte aus Messungen, die je 1404 Stunden dauerten.

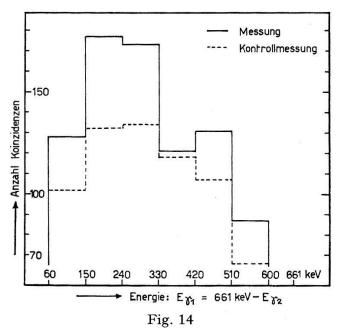
Ein Vergleich dieser Werte mit der Verteilung der Figur 10 lieferte die Zahl der Cs<sup>134</sup>-Koinzidenzen (Gl. 4.3). Eine weitere Analyse zeigt einen Überschuss im Gebiet niedriger Energien, der durch zweifache Emission von weichen Bremsquanten erklärt werden kann. Der geringe Überschuss im Gebiet der Photospitze des Cs<sup>137</sup>-Spektrums könnte dadurch entstanden sein, dass im Fall «Kontrollmessung» mehr durch Compton-Effekt gestreute Quanten auf den Kristall fallen als im andern Fall. Die «Kontrollmessung» hätte dann einen kleineren Photoanteil.

Innerhalb des statistischen Fehlers sind keine weiteren, merklichen Störeffekte zu finden.

b) Spektrum der Zweiquantenemission. Die Verteilung der Koinzidenzen im Energiegebiet

$$661 - 45 \text{ keV} < E \gamma_1 + E \gamma_2 < 661 + 45 \text{ keV}$$

das für die Zweiquantenemission in Frage kommt, ist im folgenden Histogramm Figur 14 dargestellt.



Koinzidenzen pro Intervall  $\Delta E = 90 \text{ keV}$  in 1404 h

Aus der Zahl n(2) der ausgewählten Koinzidenzen berechnet sich die Zahl N(2) von Zweiquantenzerfällen in der Quelle:

$$N^{(2)} = n^{(2)} \frac{1}{2} \frac{4\pi}{\Omega_1} \frac{4\pi}{\Omega_2} \frac{1}{(1 - e^{-\mu_1 L}) (1 - e^{-\mu_2 L}) p_1^* p_2^*}$$
(5.1)

und aus der Zahl  $n^{(1)}$  von registrierten einfachen Zerfällen die Zahl  $N^{(1)}$  von einfachen Zerfällen in der Quelle

$$N^{(1)} = n^{(1)} \frac{4\pi}{\Omega} \frac{1}{1 - e^{-\mu L}}$$
 (5.2)

Darin bedeuten

 $\Omega$  der Raumwinkel von der Quelle auf einen Detektor;

 $1 - e^{-\mu L}$  Absorptionswahrscheinlichkeit in einem Detektor;

p\* der effektive Photoanteil im Szintillationspektrum.

Absorptionswahrscheinlichkeit und effektiver Photoanteil p\* wurden der Arbeit von Maeder et al. 27) entnommen. Experimentell bestimmt wurde

$$p*(661 \text{ keV}) = 37^{0}/_{0}$$

Aus den Gleichungen (5.1) und (5.2) kann nun, nach Berücksichtigung aller Korrekturen, das experimentelle Spektrum der Zweiquantenemission, bezogen auf die gesamte Zahl der Zerfälle, bestimmt werden. Das Resultat ist in der Figur 15 dargestellt. Die eingezeichneten Fehlergrenzen sind die Summe aus dem wahrscheinlichen statistischen Fehler und dem Fehler in der Bestimmung der Cs<sup>134</sup>-Koinzidenzen.

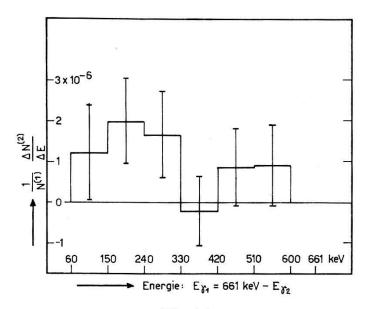


Fig. 15

Experimentelles Spektrum der Zweiquantenemission Ordinate: Anzahl Zweiquantenzerfälle pro Intervall  $\Delta E=90$  keV, bezogen auf die Zahl der einfachen Zerfälle

Das integrierte Verhältnis ergibt:

$$\frac{N^{(2)}}{N^{(1)}} = (6,4 \pm 3,1) \cdot 10^{-6}$$

wobei der Fehler wie oben berechnet wurde.

Die Halbwertszeit für Zerfall durch Zweiquanten-Übergang berechnet sich aus derjenigen des einfachen Zerfalls unter Berücksichtigung der Konversion

$$t_{1\!/2}^{(2)} = t_{1\!/2}^{(1)} \cdot rac{N^{(1)}}{N^{(2)}} \, (1+lpha)$$

$$t_{1/2}^{(2)} = (320 \pm 150) d.$$

#### 6. Schluss

Es wurde experimentell festgestellt, dass die Zweiquantenzerfälle äusserst selten sind. Mit Berücksichtigung der Fehlergrenzen kann mit Sicherheit festhalten, dass die Zahl der Zweiquanten-Übergänge verglichen mit der Zahl der einfachen M4-Übergänge

$$N^{(2)}: N^{(1)} \leqslant 10^{-5}$$
 ist.

Wie selten dieser Effekt ist, wird dadurch veranschaulicht, dass aus insgesamt 2,5 Milliarden  $\gamma$ -Zerfällen 116 Ereignisse eine solche Zeit- und Energiebeziehung zeigten, dass sie dem Zweiquanten-Zerfall zugeschrieben werden müssen.

Die gemessene Zahl der Zweiquantenübergänge ist doppelt so gross wie der statistische Fehler und um eine Grössenordnung kleiner als die theoretische Abschätzung. Das sind zwei Argumente dafür, dass hier die Zweiquantenemission wirklich nachgewiesen ist.

Eine Kaskade über das unterhalb des isomeren Zustands liegende Niveau des Ba<sup>137</sup> hätte sich in der Messung durch zwei Maxima im Spektrum (Fig. 16) bei 281 und 380 keV bemerkbar machen müssen. Von solchen Maxima ist keine Andeutung vorhanden. Diese Tatsache und die Kleinheit der theoretischen Übergangswahrscheinlichkeit berechtigen zu der Annahme, dass diese Kaskade nur einen unwesentlichen Fehler im Resultat erzeugt.

Wenn das Spektrum der Zweiquantenemission mit einiger Genauigkeit gemessen wäre, so könnten daraus die Multipolkombinationen bestimmt werden, die am Übergang zweiter Ordnung beteiligt sind. Dies würde eine Aussage über Spin und Parität der höher liegenden Niveaux des Ba<sup>137</sup> liefern. Leider ist dies bei den statistischen Fehlern des gemessenen Spektrums nicht möglich. Die Verteilung erscheint ziemlich flach, was nach den zu erwartenden Spektren (Fig. 1) sehr wohl möglich ist.

Eine Beurteilung der Zuverlässigkeit der theoretischen Abschätzungen ist sehr schwierig, weil die Eigenschaften der höher liegenden Niveaux unbekannt sind. Die empirischen Faktoren K (Tab. 2) sind nur bis auf eine Grössenordnung, einige nur bis auf zwei Grössenordnungen genau  $^{28}$ ). Weiter sind die Matrixelemente für Übergang in den Zwischenzustand mit unbekannten Phasenfaktoren behaftet, die das Resultat der Summation über alle höheren Niveaux weitgehend unsicher erscheinen lassen. Es ist immerhin bemerkenswert, dass eine Summe der Form

$$\mid \sum \langle i \mid \mathfrak{M} \ (1) \mid z \rangle \langle z \mid \mathfrak{M} \ (2) \mid f \rangle \left( \omega_z - \omega_f \right) \mid^2$$

die sich über alle Zwischenzustände mit wachsendem  $\omega_z$  erstreckt, offenbar sehr rasch konvergiert. Sie ist jedenfalls kleiner als der entsprechende Wert des Einteilchenmodells mit vollständiger Überlappung der Kern-Wellenfunktionen  $< i \mid, < z \mid$  und  $\mid f >$  für nur einen Zwischenzustand. Eine Diskussion der theoretischen Aspekte dieser Tatsache würde allerdings den Rahmen dieser Arbeit überschreiten.

Eine gewisse Verbesserung des Experiments wäre noch möglich. Man könnte den Nulleffekt der Koinzidenzen z. B. durch eine Antikoinzidenz-Abschirmung herabsetzen und den Raumwinkel von der Quelle auf den Detektor etwas vergrössern. Es dürfte dann allerdings immer noch keine Streuung von  $\gamma$ -Quanten von einem Szintillator in den anderen auftreten. Wenn als Untergrund nur die zufälligen Koinzidenzen in Frage kommen, so ist der relative statistische Fehler bei je 1000 Stunden «Messung» und «Kontrollmessung» in einem der zu Auszählung verwendeten Felder

$$N^{(2)}: N^{(1)} = 2 \cdot 10^{-7}$$

wenn für den Raumwinkel  $\Omega/4 \pi = 5\%$  und für die Einzelstosszahlen  $n_1 = n_2 = 500 \ {\rm sec^{-1}}$  angenommen wird. Dies wäre bei ideal reiner Quelle und vollständiger Unterdrückung des Nulleffektes die äusserste Grenze des Nachweises, die mit den heutigen Mitteln erreicht werden kann.

Abschliessend möchte ich Herrn Prof. Dr. P. Scherrer für seine Förderung dieser Arbeit und sein stetes Interesse an ihrem Gelingen meinen herzlichsten Dank aussprechen. Zu grossem Dank verpflichtet bin ich auch Herrn K. Alder für seine wertvollen Hinweise betreffend die Theorie; Richard Müller danke ich für seine Diskussionsbeiträge beim Entwerfen der elektronischen Schaltungen.

## Literaturverzeichnis

- 1) M. GOEPPERT-MAIER, Ann. Physik 9, 273 (1931).
- <sup>2</sup>) G. Wentzel, Hdb. d. Physik, Bd. XXIV (Berlin-Göttingen-Heidelberg: Springer, 1933).
- <sup>3</sup>) C. Berset, J. Horowitz, A. Messiah und J. Winter, J. de Physique 15, 251 (1954).
- <sup>4</sup>) K. Althoff, Z. Physik 141, 33 (1955).
- <sup>5</sup>) R. G. Sachs, Phys. Rev. 57, 194 (1940).
- 6) T. Yuasa, J. Laberrigue-Frolow und L. Feuvrais, J. de Physique 18, 494 (1957).
- <sup>7</sup>) M. Goldhaber, C. O. Muehlhause und S. H. Turkel, Phys. Rev. 71, 372 (1947).
- 8) M. L. Goldberger, Phys. Rev. 73, 1119 (1948).
- 9) R. H. Dalitz, Proc. Roy. Soc. 206, 521 (1951).
- <sup>10</sup>) J. R. Oppenheimer und J. S. Schwinger, Phys. Rev. 56, 1066 (1939).
- <sup>11</sup>) J. EICHLER und G. JACOB, Z. Physik 157, 286 (1959).
- <sup>12</sup>) S. A. Moskowski, Kap. XIII in: Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy, herausgegeben von K. Siegbahn (North Holland Publishing Co., Amsterdam 1955).
- <sup>13</sup>) K. Alder, A. Bohr, T. Huus, B. Mottelson und A. Winther, Rev. Mod. Phys. 28, 432 (1956).
- <sup>14</sup>) E. U. Condon und G. H. Shortley: Theory of Atomic Spectra (Cambridge University Press, New York 1935).
- <sup>15</sup>) R. A. Ricci, Physica 23, 693 (1957).
- <sup>16</sup>) C. P. SWANN und F. R. METZGER, Phys. Rev. 100, 1329 (1955).
- <sup>17</sup>) L. W. Fagg, Phys. Rev. 109, 100 (1958).
- <sup>18</sup>) S. A. Moskowski, Phys. Rev. 83, 474 (1953).
- <sup>19</sup>) D. MAEDER, Nucl. Instr. 2, 299 (1958).
- <sup>20</sup>) W. BEUSCH, D. MAEDER und R. MÜLLER, Z. ang. Math. Phys. IXa, 294 (1958).
- <sup>21</sup>) H.-J. GERBER, Helv. Phys. Acta 31, 580 (1958).
- <sup>22</sup>) J. E. Francis, P. R. Bell und G. G. Kelley, Nucleonics 12, 55 (März 1954).
- <sup>23</sup>) W. Heitler, The Quantum Theory of Radiation, 3. Aufl., p. 250 (Clarendon Press, Oxford 1954).
- <sup>24</sup>) L. Katz und A. S. Penfold, Rev. Mod. Phys. 24, 28 (1952).
- <sup>25</sup>) Y. Yoshizana, Nuclear Phys. 5, 122 (1958).
- <sup>26</sup>) C. S. Wu, Kap. XX (III) in: Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy, loc. cit.
- <sup>27</sup>) D. Maeder, R. Müller und V. Wintersteiger, Helv. Phys. Acta 27, 3 (1954).
- <sup>28</sup>) M. GOLDHABER und A. W. SUNYAR, Kap. XVI (II) in: Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy, *loc. cit*.