Zeitschrift: Helvetica Physica Acta

Band: 48 (1975)

Heft: 3

Artikel: Statische Quadrupolwechselwirkung coulombangeregter Kerne implantiert in hexagonale Einkristalle

Autor: Roesch, Lucien Ph.

DOI: https://doi.org/10.5169/seals-114676

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: 07.08.2025

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

Helvetica Physica Acta
Vol. 48, 1975.

Birkhäuser Verlag Basel

Statische Quadrupolwechselwirkung Coulombangeregter Kerne Implantiert in Hexagonale Einkristalle

von **Lucien Ph. Roesch**

Institut für Kernphysik, Eidgenössische Technische Hochschule, Zürich

(3. II. 75)

Abstract. Quadrupole interactions of the 2^+ states of $^{182,184,186}W$, $^{150,152,154}Sm$ and $^{188,190,192}Os$ have been studied by using time-integrated perturbed angular correlations after Coulomb excitation. The experiments have been performed by using 40 MeV ^{16}O to excite and implant the investigated nuclei in Te, Cd, Zn and Gd single crystals of hexagonal structure. Strong electric quadrupole interactions have been observed in selected angular correlations taken as a function of crystal orientation. Ratios of quadrupole moments were determined. Electric field gradients acting on the implanted nuclei in the single crystals have been evaluated using values for the quadrupole moments derived from $E2$ transition probabilities. A comparison with the calculated ionic contribution of the lattice shows that great importance has to be attributed to the conduction electrons. In two cases the sign of the quadrupole interaction has also been measured using the polarization after a Coulomb excitation.

1. Einführung

Die grosse Bedeutung, die der Bestimmung von Kernmomenten in der heutigen Kernphysik zukommt, erklärt sich aus der Tatsache, dass diese physikalischen Grössen Träger wichtiger Informationen über die Struktur der Kerne und ihrer angeregten Zustände sind. Sie stellen empfindliche Sonden für Kernpotentiale und Wellenfunktionen dar. Wesentliche Konzeptionsänderungen an Kernmodellen sind zurückzuführen auf neue oder genauere Messungen von Kernmomenten spezieller Zustände.

Im Gegensatz zu den zahlreichen g-Faktor-Messungen nimmt sich die Zahl der zuverlässig bestimmten Quadrupolmomente sehr bescheiden aus. Einen neuen, zusätzlichen Impuls zur Intensivierung der Untersuchung von Kernmomenten gab das in den letzten Jahren ausserordentlich gestiegene Interesse an Hyperfeinwechselwirkungen in Festkörpern. Ein interdisziplinäres Forschungsgebiet wurde damit erschlossen, welches sowohl Aspekte der Kernphysik wie der Festkörperphysik umfasst, das von beiden Seiten angegangen werden kann und dessen Resultate die Kenntnisse beider Richtungen zu bereichern und erweitern vermag.

Eine Zusammenarbeit drängt sich auch insofern auf, als Kernmomente in vielen Fällen über die Wechselwirkung mit umgebenden magnetischen oder elektrischen Feldern bestimmt werden, die in der benötigten Grössenordnung im Laboratorium nicht erzeugt werden können, wohl aber in Festkörpern gefunden werden. Mehrere Messverfahren sind heute bekannt, die imstande sind, Wechselwirkungsparameter, d.h. Produkte aus Kernmoment und auf den Kern einwirkende Felder, zu liefern. Falls Absolutwerte einer der beiden Grössen aus anderen Messungen zur Verfügung stehen, kann die verbleibende Unbekannte daraus ermittelt werden.

In den letzten Jahren ist die IMPAC (ion implantation perturbed angular correlations) genannte Technik der Untersuchung von gestörten Winkelkorrelationen vermehrt zum Studium von sogenannten Hyperfeinwechselwirkungen herbeigezogen worden. Grosse Erfolge konnten dabei bei magnetischen Wechselwirkungen verzeichnet werden, wo durch Implantation angeregter Kerne in ferromagnetische Materialien nicht nur sehr genaue Bestimmungen von g-Faktoren möglich waren, sondern auch eine ganze Systematik der internen Magnetfelder aufgestellt werden konnte. Man hoffte natürlich, dass etwas ähnliches auch im Falle von statischen Quadrupolwechselwirkungen möglich wäre, da man auf die in der Natur vorkommenden hohen elektrischen Feldgradienten angewiesen ist. Ein Hindernis auf dem Weg zur raschen Realisierung des zum magnetischen Fall analogen Experimentes war die Tatsache, dass reine, orientierte Einkristalle, in denen grosse Feldgradienten vorzufinden sind, nicht erhältlich waren und dass die Implantationsmechanismen noch zu wenig gut beherrscht wurden. Obwohl diese Schwierigkeiten heute weitgehend überwunden sind, wurden bis jetzt nur wenige Winkelkorrelationen beobachtet, die durch den Einfluss kristalliner Felder auf nichtsphärische Kernzustände deutlich gestört waren.

Seit einigen Jahren schon werden am Laboratorium für Kernphysik der ETHZ Untersuchungen von statischen Quadrupolwechselwirkungen mit Hilfe gestörter Winkelkorrelationen durchgeführt. Die vorliegende Arbeit berichtet über die Gesamtheit der experimentell ermittelten Teilchen-γ-zeitintegrierten Winkelkorrelationen, die an den 2^+ Rotationsniveaus (in einigen Fällen auch 4^+) der Isotope ^{182,184,186}W, ^{150,152,154}Sm und ^{188,190,192}Os gemessen wurden. Die Implantation der Kerne in Einkristalle von Te, Cd, Zn und Gd erfolgte nach einer Coulombanregung mit schweren Ionen des Tandem Van-de-Graaff-Beschleunigers.

Das Ziel dieser Reihe von Experimenten war es, zu demonstrieren, dass aus solchen IMPAC-Messungen ein eindeutiges Produkt aus Quadrupolmoment und elektrischem Feldgradienten mit guter Genauigkeit ermittelt werden kann, unter Benützung speziell geeigneter Orientierungen der Kristallachse, um störende Nebeneffekte zu minimalisieren. Es sollte auch abgeklärt werden, in wieweit solche Messungen für die Kernphysik nützliche Informationen über kurzlebige Zustände liefern und in wieweit sie dazu dienen können, die Kenntnisse über elektrische Feldgradienten in Festkörpern zu vertiefen.

Der Erfolg dieser mit relativ bescheidenem technischem Aufwand durchgeführten Experimente erlaubt eine direkte Anwendung des gleichen Messverfahrens auf eine Anzahl von Kernniveaus, um mit zufriedenstellender Genauigkeit Quotienten von Quadrupolmomenten zu bestimmen. Daneben lassen sich wichtige Schlüsse über die mögliche Zusammensetzung der Feldgradienten in Kristallen ziehen. In dieser von Kernphysikern durchgeführten Arbeit wurden die festkörperphysikalischen Implikationen absichtlich in einem engeren Rahmen gehalten.

THEORIE

2. Quadrupolwechselwirkungen

In einem Koordinatensystem, dessen Achsen die Hauptachsen des Tensors des elektrischen Feldgradienten sind, besitzt dieser nur die drei Diagonalkomponenten V_{xx}, V_{yy} und V_{zz}, welche folgendermassen definiert werden:

$$V_{ii} = \frac{\partial E_i}{\partial x_i} - 1/3 \left(\sum_i V_{ii} \right) \tag{2.1}$$

Es ist üblich einen Asymmetriefaktor $\eta = (V_{xx} - V_{yy})/V_{zz}$ einzuführen, damit der elektrische Feldgradient (EFG) durch die beiden Grössen V_{zz} und η beschrieben werden kann. Findet nun eine Wechselwirkung zwischen dem EFG und einem Kern im Zustand mit Spin I und Quadrupolmoment Q statt, so kann der Hamiltonoperator folgendermassen geschrieben werden:

$$H = \frac{eQV_{zz}}{4I(2I-1)}(3I_z^2 - I(I+1) + 1/2\eta(I_+^2 + I_-^2)) \tag{2.2}$$

wobei I_+ und I_- die Spin-Auf- und Abstiegsoperatoren sind. Im Falle eines axialsymmetrischen EFG, d.h. für $\eta = 0$ ergeben die Energieeigenwerte:

$$E_M = \langle IM|H|IM\rangle = \frac{3M^2 - I(I+1)}{4I(2I-1)} eQV_{zz} \tag{2.3}$$

Beim Vorliegen eines asymmetrischen Feldgradienten muss der Operator diagonalisiert werden. Führt man eine zur Larmorfrequenz analoge Quadrupolfrequenz ein:

$$\omega_Q = \frac{eQV_{zz}}{4\hbar I(2I-1)} \quad \text{und} \quad \omega_0 = 3\omega_Q \tag{2.4}$$

so lassen sich die Eigenwerte wie folgt darstellen:

$$E_M = \hbar\omega_Q(3M^2 - I(I+1)) \tag{2.5}$$

Das Ziel aller Messungen von Hyperfeinwechselwirkungen besteht darin, die in Gleichung (2.4) definierte Quadrupolfrequenz ω_0 zu bestimmen. Sie ist proportional zum Produkt aus dem Quadrupolmoment des betrachteten Kernzustandes und der Grösse des EFG. In der Tatsache, dass man ein Produkt zweier interessanter aber unbekannter physikalischer Grössen misst, liegt die ganze Ambivalenz der Untersuchungen von Quadrupolwechselwirkungen. Eine Bestimmung der Kernmomente ist also nur bei Kenntnis der kristallinen Umgebung möglich, umgekehrt lässt sich aus bekannten Deformationsparametern des Kernes der EFG in verschiedenen Festkörpern bestimmen. Daneben ist die Gewinnung relativer Daten, Quotienten von Quadrupolmomenten und EFG stets möglich.

Der Schwerpunkt der Zielsetzung von IMPAC-Messungen lag anfangs auf der Bestimmung von Quadrupolmomenten kurzlebiger Zustände, weil man gerne Kernmodelle an einer möglichst grossen Zahl von Zuständen prüfen wollte. Die Ermittlung absoluter Werte scheiterte aber am Mangel an Informationen über die Felder in Festkörpern, welche auf die implantierten Kerne wirken. So wurde das Ziel der gleichen Experimente von nun an das Aufdecken der Herkunft und der Zusammensetzung des EFG, indem mit relativ genau ermittelten Quadrupolmomenten Experimente durchgeführt wurden. In den letzten Jahren war es möglich über einige Kristalle wesentliche, neue Kenntnisse zu gewinnen. Trotzdem ist heute erst eine grobe Beschreibung des Aufbaus des effektiven EFG in Festkörpern möglich. Das Interesse an Messungen von Quadrupolmomenten, speziell solcher von höheren Rotationszuständen, ist aber noch nicht geschwunden und man kann eine Fortsetzung von IMPAC-Messungen mit Hilfe gut erforschter Kristallstrukturen erwarten.

2.1. Zielsetzung Kernphysik

Mehrere Eigenschaften der Kerne zeigen an, dass ihre Bewegungen nicht nur als einfache Einteilchen-Anregungen interpretiert werden können, wie dies im Schalen-

modell angenommen wird. Die Annahme eines sphärisch symmetrischen und stationären Kernpotentials scheint weit weg von magischen Kernen nicht berechtigt zu sein. Gewichtige Tatsachen, die das Vorhandensein von kollektiven Bewegungen direkt implizieren, sind die grossen gemessenen Übergangswahrscheinlichkeiten und Quadrupolmomente in der Gegend der Seltenen Erden. Diese können dadurch erklärt werden, dass solche Kerne stark von der Kugelform abweichende Gestalt haben und um eine Achse rotieren, da ihre Spektren dem typischen $I(I+1)$-Gesetz gehorchen. Eine andere Art von kollektiven Bewegungen sind die Vibrationen, die nicht unbedingt, wie man früher glaubte, kleine Quadrupolmomente ergeben.

Der erste Schritt zur Beschreibung der kollektiven Bewegungen und Schwingungen wurde durch das Aufstellen des Unified Models durch Bohr und Mottelson getan. Die Berechnungen von Quadrupolmomenten sind sehr empfindlich bezüglich der Wellenfunktionen, die man zur Beschreibung des angeregten Zustandes benützt. Für das Studium der Kernstruktur und Kernkräfte ist es unerlässlich, dass diese durch aufwendige Berechnungen erhaltenen Werte mit Messdaten verglichen werden können. Eine Anzahl von Quadrupolmomenten von 2^+ Niveaus in *gg*-Kernen wurde bereits untersucht und bedeutende Resultate für das bessere Verständnis des Verhaltens jener Kerne gewonnen.

Das Quadrupolmoment ist von besonderer Bedeutung in der Untersuchung von Kerndeformationen, gibt es doch die Abweichung der Ladungsverteilung von der sphärischen Symmetrie wieder. Klassisch wird das Quadrupolmoment definiert durch:

$$Q = \frac{1}{e}\sqrt{\frac{16\pi}{5}} \int \rho(r)\, r^2\, Y_{20}(\vartheta)\, dV \tag{2.6}$$

wobei $\rho(r)$ die Ladungsdichte bezeichnet. Beim Übergang zur Quantenmechanik muss dieses $\rho(r)$ durch den Ladungsdichte-Operator $\rho(r) = \sum_\nu eP_\nu(r)$ ersetzt werden, wobei $P_\nu dV$ die Wahrscheinlichkeit darstellt, ein Nukleon im Volumen dV zu finden. Das Quadrupolmoment erhält man nun als Erwartungswert des Quadrupoloperators:

$$Q = \langle Q(r) \rangle \tag{2.7}$$

Beschreibt man einen axialsymmetrischen nichtsphärischen Kern durch eine Wellenfunktion [1]

$$\Psi_{IMK} \propto D^I_{MK}(\theta)\, \Phi_K + (-1)^I \pi D^I_{M-K}(\theta)\, \Phi_{-K} \tag{2.8}$$

wobei I den Drehimpuls, M die z-Komponente im Laborsystem und K die Projektion von I auf die Symmetrieachse des körperfesten Systems bezeichnet, so kann der Erwartungswert (2.7) berechnet werden.

Grundsätzlich muss unterschieden werden zwischen dem inneren Quadrupolmoment Q_0 eines Kernzustandes, welches bezüglich eines körperfesten Koordinatensystems definiert wird und dem spektroskopischen Quadrupolmoment Q_2, das durch den Maximalwert eines von einem Laboratoriumssystem beobachteten Quadrupolmomentes gegeben wird. Man erhält somit:

$$\langle Q \rangle_{M=I} = \frac{2I-1}{8\pi^2} \int D^{I*}_{IK} D^2_{00} D^I_{IK}\, \mathrm{d}\theta \int \Phi^*_K \left(\frac{16\pi}{5} \sum r_i'^2\, Y_{20}(\vartheta_i') \right) \Phi_K\, \mathrm{d}x_i \tag{2.9}$$

Nach Gleichung (2.8) spaltet sich die Wellenfunktion auf in einen Teil Φ_K, der den inneren Zustand des Kernes beschreibt und der multipliziert wird mit einem Faktor, der den Rotationszustand durch I und K charakterisiert. Man bezeichnet nun als inneres Quadrupolmoment den zweiten Faktor von (2.9):

$$Q_0 = \langle \Phi_K | Q(x_i') | \Phi_K \rangle \tag{2.10}$$

Durch Berechnung des Produktes der drei D-Funktionen erhält man folgende Beziehung zwischen dem inneren und dem spektroskopischen Quadrupolmoment:

$$Q_2 = \langle Q \rangle_{I=M} = \frac{3K^2 - I(I+1)}{(I+1)(2I+3)} Q_0 \tag{2.11}$$

Die Nichtdiagonalelemente des Operators Q sind verantwortlich für die Übergangsprozesse wie $E2$-Übergänge oder Coulombanregung. Die Amplituden für solche Prozesse hängen mit den Matrixelementen des Quadrupoloperators zusammen. Für Kerne, die ein Rotationsspektrum erkennen lassen, kann, unter der Voraussetzung eines symmetrischen Rotators, die γ-Übergangswahrscheinlichkeit $B(E2)$ mit Q_0 in Beziehung gebracht werden:

$$B(E2)(I_i \to I_f) = \frac{5}{16\pi} e^2 Q_0^2 (2I_f + 1) \begin{pmatrix} I_i & 2 & I_f \\ K & 0 & -K \end{pmatrix}^2 \tag{2.12}$$

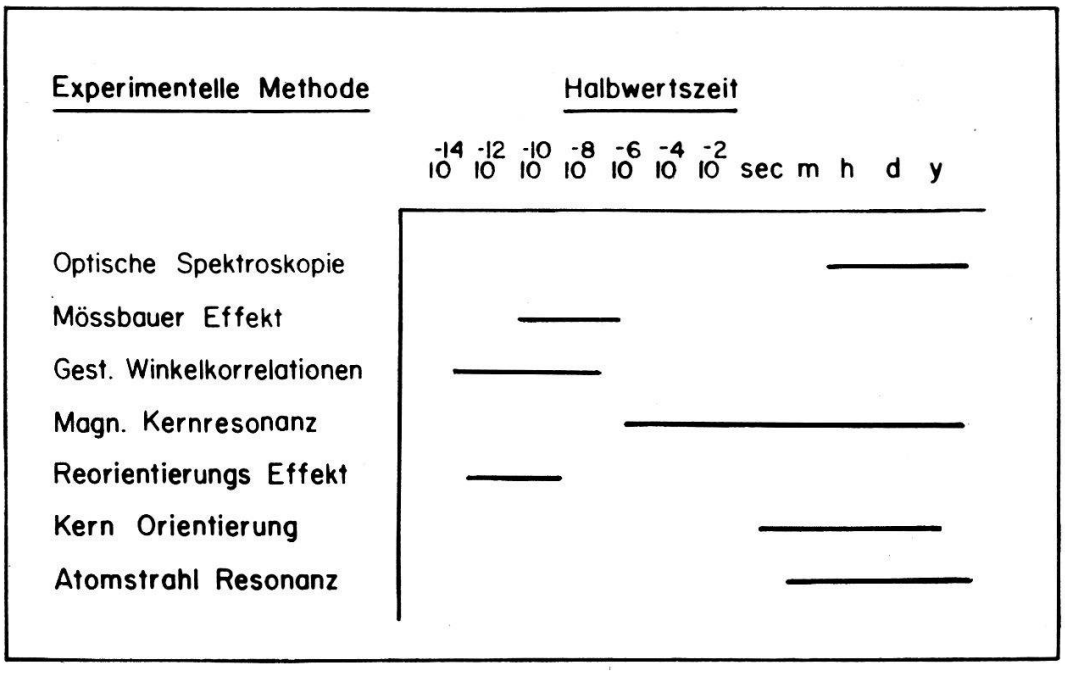
wobei der Übergang vom Kernzustand mit Spin I_i zum Zustand mit Spin I_f mit einem Transfer eines Drehmomentes vom Betrag 2 verbunden ist.

Es werden in der Kernphysik vierlerlei Deformationsparameter zur Beschreibung der Deformation eines Kernes verwendet [2]. Führt man den Deformationsparameter β durch die Gleichung $R = R_0\,(1 + \alpha Y_{00} + \beta Y_{20})$ eines Ellipsoides ein (αY_{00} wird für die Bedingung konstanten Volumens gebraucht), so gilt die Formel:

$$Q_0 = \frac{3}{\sqrt{5\pi}} Z R_0^2 \left(1 + 1/8 \sqrt{\frac{5}{\pi}} \beta + \ldots\right) \tag{2.13}$$

Die inneren Quadrupolmomente Q_0 können aus der Streuung hochenergetischer Elektronen oder wie Formel (2.12) zeigt, aus den Übergangswahrscheinlichkeiten von γ-Zerfällen gewonnen werden. Figur 1 fasst als Funktion der Lebensdauer der Zustände die wesentlichsten Messtechniken für Q_2 zusammen Für stabile oder langlebige Zustände eignen sich die Optische Spektroskopie und die Kernresonanz-Methode am besten. Im Bereich der kurzlebigen Zustände konkurrieren drei Verfahren, der Mössbauer-Effekt, der Reorientierungseffekt bei Coulombanregung und die Methode der gestörten Winkelkorrelationen.

Der Reorientierungseffekt ist ein Effekt 2. Ordnung in der Bestimmung der Coulombanregung und bewirkt, dass die Anregungswahrscheinlichkeit schwach von der Grösse des Quadrupolmomentes abhängt. Die ersten damit gewonnenen Daten waren nicht in Einklang mit bereits gemessenen Kernmomenten, dagegen sind die in letzter Zeit durchgeführten Messungen mit schweren Ionen zuverlässiger. Die Anwendung des Mössbauer-Effektes ist auf niederenergetische Zustände beschränkt. Was die Messungen von gestörten Winkelkorrelationen anbetrifft, so ist die Beschränkung einzig durch das Produkt $\omega_0 \tau$ gegeben, welches zwischen 0,1 und 1,0 liegen sollte. Da die bis



Figur 1

heute gefundenen EFG in Festkörpern keine grosse Bandbreite erkennen lassen, bedeutet dies hauptsächlich eine Einschränkung auf Lebensdauern von der Grössenordnung von nsec.

2.2 Zielsetzung Festkörperphysik

Bis vor wenigen Jahren waren die Kenntnisse über die kristallinen Felder äusserst rudimentär. In letzter Zeit sind aber grosse Anstrengungen unternommen worden, um durch Berechnungen und Messungen diese Lücke wenigstens für die einfachsten Kristallstrukturen (kubisch und hexagonal) etwas zu schliessen.

Man nimmt an, dass der Tensor des EFG in einem Metall an einem bestimmten Gitterplatz aus verschiedenen Beiträgen zusammengesetzt wird. Ein schon lange Zeit bekannter Anteil wird hervorgerufen von den positiv geladenen Atomrümpfen der Gitterstruktur. Die Bedeutung der Elektronen beim Aufbau des totalen EFG wurde aber bis vor kurzer Zeit nicht verstanden. Man weiss jetzt, dass die nichtsphärische Verteilung der Leitungselektronen beträchtliche Korrekturen zum ionischen Beitrag leistet und dass der daraus resultierende EFG sogar in einzelnen Fällen dominant sein kann. Dann muss auch die Verformung von gefüllten Elektronenwolken berücksichtigt werden. Man schreibt deshalb folgende Zerlegung des EFG auf:

$$V_{zz} = V_{zz}^{\text{Gitter}}(1-\gamma_\infty) + V_{zz}^{\text{Elektronen}}(1-R_Q) \tag{2.14}$$

Dabei bedeuten γ_∞ und R_Q die üblichen Sternheimer Antishielding-Faktoren. γ_∞ berücksichtigt die Polarisation des Rumpfatomes durch das Gitter. Die Einführung weiterer Terme in (2.14) erweist sich bei Übergangselementen als nützlich.

2.2.1. Gitteranteil. Der erste Term V_{zz}^{Gitter} beschreibt also den ionischen, d.h. den vom Kristallgitter verursachten Beitrag zum gesamten EFG, der auf die Probekerne wirkt. Dieser Anteil ist in ionischen Verbindungen der weitaus dominante, und ist nur schwach abhängig von äusseren Einflüssen wie Druck und Temperatur, denn auch die Abstände der Gitteratome variieren nur leicht. Man weiss, dass V_{zz}^{Gitter} in kubischen Kristallen verschwindet und in hexagonalen Strukturen besonders gross ist. V_{zz}^{Gitter}

kann durch verschiedene Summationsverfahren [3, 4] erhalten werden, wobei es darum geht, eine Summation der Coulombkräfte der nächsten Gitteratome durchzuführen. Die Konvergenz erfolgt dabei ziemlich rasch, so dass man ohne grossen Aufwand gute Approximationen erhält. Eine der bekanntesten Formeln zur Berechnung des ionischen Anteils in hexagonalen Kristallstrukturen wurde von Das und Pomerantz [4] angegeben und kann als einfache Funktion der beiden aufeinander senkrecht stehenden Kristallachsen a und c der Einheitszelle angegeben werden:

$$V_{zz}^{\text{Gitter}} = \frac{Ze}{4\pi\varepsilon_0}(0{,}0065 - 4{,}3584\,(c/a - 1{,}633))/a^3 \tag{2.15}$$

wobei Z die Valenzzahl der Ionen im Kristallgitter bedeutet.

2.2.2. Elektronenanteil. Im Gegensatz zu ionischen Verbindungen können in Metallen die Elektronen nicht mehr als lokalisiert betrachtet werden, weshalb zusätzliche Beiträge zum EFG betrachtet werden müssen. Ein Hauptanteil zu V_{zz} wird erwartet von der asphärischen Ladungsverteilung der Elektronen, im allgemeinen durch unausgeglichene p Valenzelektronen. Verschiedene Aufteilungen in 'local', 'nonlocal' und 'overlapping' Terme sind bekannt [5], sollen hier aber nicht weiter erläutert werden. Das Stadium des Beitrages der Leitungselektronen verlangt die genaue Kenntnis der Besetzung des Fermivolumens. Die Energien der einzelnen Bänder und die Wellenfunktionen müssen berechnet werden für jeden k-Punkt in der Brillouinzone. Die besetzten Eigenzustände werden sodann für die Berechnung des $V_{zz}^{\text{Elektronen}}$ verwendet. Solche Berechnungen stellen sehr grosse Probleme und wurden nur in wenigen Fällen gemacht [6, 7].

Im allgemeinen erwartet man, dass je mehr die Leitungselektronen freien Elektronen gleichen, desto kleiner ihr Beitrag zum EFG sein wird. Dies folgt daraus, dass vollkommen freie Elektronen nicht im Stande sind, eine orientierungsabhängige Wechselwirkung zu bewirken. Die in verschiedenen Experimenten beobachtete Druck- und Temperaturabhängigkeit von $V_{zz}^{\text{Elek.}}$ wurde als Änderung von s zu p Wellenfunktionen gedeutet.

3. Theorie der gestörten Winkelkorrelationen

Die grundlegende Arbeit über die Störung von verschiedenen Winkelkorrelationen wurde von *K.* Alder und seinen Mitarbeitern vor zwanzig Jahren veröffentlicht [8]. Eine wichtige Aussage der Theorie besagt, dass die Winkelverteilung einer Kernstrahlung von der Orientierung des Kernzustandes zum Zeitpunkt der Emission der Strahlung abhängt. Findet nun während der Lebensdauer des Zustandes eine Wechselwirkung mit der Umgebung statt, so kann diese die Orientierung verändern, was eine charakteristische Störung der Winkelkorrelation zur Folge hat. Die Theorie soll in diesem Kapitel nur in groben Zügen skizziert werden. Für detailliertere Analysen sei auf die Referenzen [9, 10, 11] verwiesen.

Eine interessante Erweiterung des Anwendungsgebietes der Theorie der gestörten Winkelkorrelationen ergab sich, nachdem man neben den γ-Strahlungsübergängen auch Kernreaktionen zur Bevölkerung des intermediären Niveaus betrachtete. Als wichtiger Spezialfall davon darf die Coulombanregung von Rotationszuständen bezeichnet werden [11, 12]. Grundsätzlich kann man zwischen zeit-differentiellen (TDPAC) und zeit-integrierten (TIPAC) Messungen unterscheiden. Die ersteren

betrachten die Wechselwirkung als Funktion der Zeit, d.h. sie beobachten das dynamische Verhalten des Systems und sind nur auf Zustände mit längeren Lebensdauern anwendbar. Dagegen untersucht man mit zeit-integrierten Messungen das statische Verhalten, denn die Wechselwirkung wird über die Lebensdauer gemittelt.

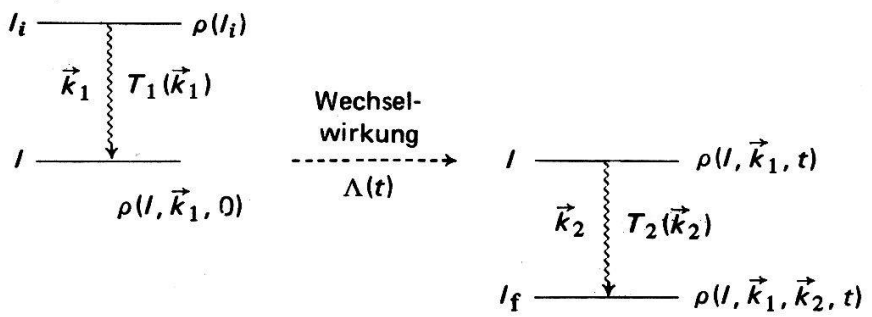
Im Falle der IMPAC-Technik betrachtet man folgenden dreistufigen Prozess:

1) Die erste Phase besteht in der Population des intermediären Zustandes durch Coulombanregung mit Hilfe eines Strahles schwerer Ionen.
2) In der anschliessenden Phase werden die angeregten Kerne des Targets durch den Rückstoss der Reaktion in ein Backing mit hohem EFG implantiert, wo die Wechselwirkung während der Lebensdauer des Zustandes stattfindet.
3) In einer dritten Phase werden die Winkelverteilungen der γ-Ubergänge zwischen den Rotationsniveaus registriert.

Die Winkelkorrelation zwischen den rückgestreuten Ionen und den Rotationsübergängen ist nun in charakteristischer Weise abhängig von der Störung der Spinorientierung in den Feldern des Backings.

3.1. Population des intermediären Zustandes

Die Orientierung des Anfangszustandes eines Kernes mit Spin I_i wird vollständig durch die Dichtematrix $\rho(I_i)$ beschrieben. Der Übergang von diesem Zustand zum intermediären Zustand mit Spin I, den man untersuchen will, sei im Übergangsoperator $T_1(\vec{k}_1)$ enthalten, wobei $\vec{k}_1$ die Richtung der Strahlung von I_i nach I bezeichnet. Dieser Prozess kann sowohl ein γ-Zerfall in einer Kaskade als auch eine Anregung durch eine Kernreaktion sein. Da die Coulombanregung als reine elektromagnetische Wechselwirkung gut verstanden und beschrieben wird, ist eine genaue Angabe der Dichtematrix des intermediären Zustandes zur Zeit $t = 0$ $\rho(I,\vec{k}_1,0)$ möglich. Sie kann bestimmt werden aus den statischen Tensoren $t_{k_1q_1}(0)$. Bei der Betrachtung mehrfacher Coulombanregung können die statistischen Tensoren exakt mit dem Programm Von DeBoer-Winther [13] berechnet werden.



Figur 2

3.2. Wechselwirkung mit umgebenden Feldern

Während der Lebensdauer τ des neu gebildeten Zustandes soll nun eine elektrische, magnetische, statische, oder zeitabhängige Wechselwirkung stattfinden, welche die Orientierung des Zustandes, d.h. die Dichtematrix, transformiert. Im Falle einer einfachen statischen Wechselwirkung zwischen dem Quadrupolmoment Q_2 und dem EFG kann der Hamiltonoperator wie in Gleichung (2.2) aufgeschrieben werden. Die

Zeitentwicklung der Dichtematrix wird nun durch die Neumann-Gleichung bestimmt:

$$\dot{\rho} = -(i/\hbar)\,[H, \rho] \tag{3.1}$$

deren Lösung gegeben ist durch:

$$\rho(I, \vec{k}_1, t) = e^{-(i/\hbar)Ht}\,\rho(I, \vec{k}_1, 0)\,e^{(i/\hbar)Ht} \tag{3.2}$$

3.3. *γ-Zerfall*

Durch einen Strahlungsübergang in Richtung $\vec{k}_2$ gehe der gestörte Zustand anschliessend in einen dritten Zustand mit Spin I_f über. Die Winkelverteilung dieser γ-Strahlung kann nun beschrieben werden als eine Summe von Kugelfunktionen $Y_{k_2 q_2}(\theta, \Phi)$:

$$W(\theta, \Phi) = \sum_{k_2 q_2} \sqrt{\frac{4\pi}{2k_2 + 1}}\, A_{k_2}\, t_{k_2 q_2} Y_{k_2 q_2}(\theta, \Phi) \tag{3.3}$$

wobei die Koeffizienten A_{k_2} die Eigenschaften des Zerfallsmechanismus und die $t_{k_2 q_2}$ die Orientierung des zerfallenden Kernzustandes beschreiben. Aus Gründen der Paritätserhaltung läuft die Summation nur über gerade k_2 0, 2, 4, ...

3.4. *Winkelverteilung*

Die Winkelkorrelationsfunktion zwischen der Richtung der anregenden Ionen $\vec{k}_1$ und dem γ-Ubergang in Richtung $\vec{k}_2$ ist nun gestört durch die Wechselwirkung des intermediären Zustandes mit seiner Umgebung. Aus Gleichung (3.2) erhält man durch den Übergang zu einer Beschreibung mit statistischen Tensoren:

$$t_{k_2 q_2}(t) = \sum_{k_1 q_1} G_{k_1 k_2}^{q_1 q_2}(t)\, t_{k_1 q_1}(0) \tag{3.4}$$

Die Koeffizienten $G_{k_1 k_2}^{q_1 q_2}(t)$ werden als Attenuations- oder Störungskoeffizienten bezeichnet. Sie enthalten die gesamte Information über die Art und die Stärke der Wechselwirkung des untersuchten Kernzustandes. Dadurch kann eine übersichtliche Darstellung der Winkelverteilung angegeben werden durch:

$$W(\vec{k}_1, \vec{k}_2, t) = \sum_{k_1 q_1 k_2 q_2} \left(4\pi \frac{2k_1 + 1}{2k_2 + 1}\right)^{1/2} A_{k_1 k_2}^{q_1 q_2} G_{k_1 k_2}^{q_1 q_2}(t)\; Y_{k_2 q_2}(\theta, \Phi) \tag{3.5}$$

Durch die Gleichungen (3.4) und (3.5) werden die verallgemeinerten Korrelationskoeffizienten $A_{k_1 k_2}^{q_1 q_2}$ definiert. Sie werden gebildet aus dem Produkt der statistischen Tensoren, die die Coulombanregung beschreiben und den üblichen γ-Korrelationskoeffizienten. Um die Winkelkorrelationsfunktion weiter vereinfachen zu können, muss ein bestimmtes Koordinatensystem gewählt werden. Die beiden am meisten benützten Varianten sind:

1) Das Koordinatensystem (3) aus Ref. [13], in dem die z-Achse parallel zur Strahlachse liegt.
2) Im Falle eines axialsymmetrischen EFG kann die z-Achse, als Quantisierungsachse, parallel zur Symmetrieachse des Feldes gewählt werden. Es gilt dann $q_1 = q_2 = q$.

Zur Beschreibung von IMPAC-Experimenten mit Einkristallen erweist es sich häufig als bequemer, die Winkelkorrelation als Funktion von θ, ϑ und φ anzugeben. θ ist dabei der Winkel zwischen $\vec{k}_1$ und $\vec{k}_2$, ϑ und φ legen die Orientierung des EFG bezüglich der Ebene $(\vec{k}_1, \vec{k}_2)$ fest.

3.5. *Korrelationskoeffizienten*

Die Korrelationskoeffizienten $A^{q_1 q_2}_{k_1 k_2}$ können, wie bereits erwähnt, weiter zerlegt werden. Im Falle einer γ-γ-Korrelation haben sie folgende Gestalt:

$$A_{k_1 k_2} = F_{k_1}(L_1 L_1 I_i I) F_{k_2}(L_2 L_2 I_f I) \tag{3.6}$$

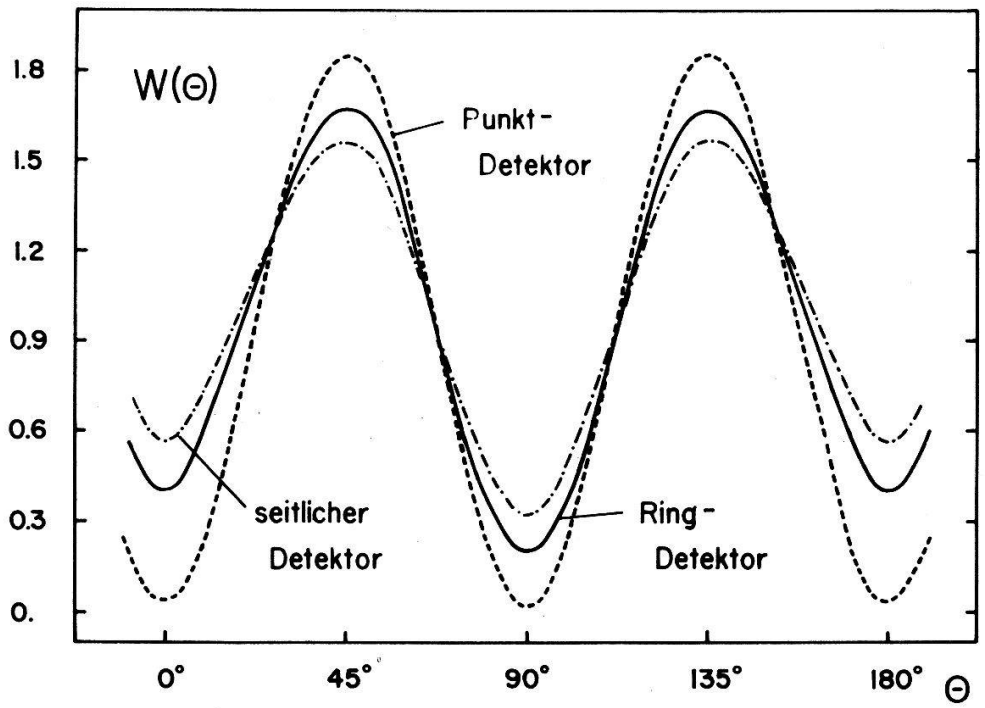
und die Winkelverteilung kann in Ref. [10] nachgesehen werden. Im Falle der Coulombanregung als Populationsprozess des Kernzustandes erhält man sie durch:

$$A^{q_1}_{k_1 k_2} = a^{(3)}_{k_1 q_1}(\theta_p, \xi)\, e^{i q_1 \Phi_p} F_{k_2}(L_2 L_2 I_f I) \tag{3.7}$$

wobei hier für die statistischen Tensoren die Notation aus Ref. [13] übernommen wird. θ_p bezeichnet dabei den Streuwinkel des anregenden Projektils und ξ ist der Adiabazitäts-Parameter. Im Falle eines Punktdetektors auf der Strahlachse betragen die Korrelationskoeffizienten:

$$A_{k_1 k_2} = (2k_1 + 1)^{1/2} \begin{pmatrix} 2 & 2 & k_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} F_{k_2} \tag{3.8}$$

Im allgemeinen Fall müssen aber die statistischen Tensoren mit Hilfe des Computerprogrammes von DeBoer und Winther berechnet werden. In die Korrelationskoeffizienten hinein nimmt man sodann auch die Raumwinkelkorrekturen. Für einen Ring-



Figur 3
Berechnung der ungestörten Winkelkorrelation für einen idealen Punktdetektor, einen Ringdetektor um die Strahlachse und einen seitlich angebrachten Detektor.

detektor endlicher Ausdehnung muss eine Integration über die aktive Fläche durchgeführt werden:

$$A_{k_1k_2} = \int a_{k_10}^{(3)}(\theta_p, \xi) \frac{d\sigma_{\text{Ruth}}}{d\Omega} \sin(\theta_p)\, d\theta_p F_{k_2} Q_{k_2} \tag{3.9}$$

wobei nur $q_1 = 0$ beiträgt und Q_{k_2} die Raumwinkelkorrektur für die Strahlung $\vec{k}_2$ berücksichtigt.

Figur 3 zeigt übereinander drei Winkelkorrelationen, die eine für einen Punktdetektor, die andere mit Korrelationskoeffizienten berechnet nach (3.9) für einen Ringdetektor und die dritte für einen seitlich angebrachten Detektor. Der Integrand hängt im zweiten Falle nur leicht von θ_p ab. Dies ist bei einem seitlich von der Strahlachse angebrachten Detektor nicht mehr der Fall und die Berechnung muss sehr sorgfältig durchgeführt werden. Der relative Fehler auf den für einen Ringdetektor berechneten $A_{k_1k_2}$ dürfte nur wenige Prozent betragen.

3.6. *Attenuationskoeffizienten*

Wie bereits erwähnt wurde, enthalten die $G_{k_1k_2}^{q_1q_2}(t)$ die gesamte Information über den Einfluss der äusseren Felder auf die Kernmomente. Sie sind somit das eigentliche Ziel der Untersuchungen. Die Attenuationskoeffizienten können direkt aus Gleichung (3.2) gewonen werden und als Summe über die Unterzustände geschrieben werden:

$$G_{k_1k_2}^{q_1q_2}(t) = \sum_{mn} (-1)^{2I+m+n} ((2k_1+1)(2k_2+1))^{1/2} \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ m' & -m & q_1 \end{pmatrix}$$

$$* \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ n' & -n & q_2 \end{pmatrix} \langle n|\Lambda(t)|m\rangle\langle n'|\Lambda(t)|m'\rangle^* \tag{3.10}$$

dabei gilt:

$$\Lambda(t) = e^{-(i/\hbar)Ht}$$

Aus der Bedingung der Messbarkeit der Winkelkorrelation $W(\theta) = W(\theta)^*$ lässt sich für die Störungsfaktoren folgende Hermizitätsbedingung sogleich herleiten:

$$G_{k_1k_2}^{q_1q_2} = (-1)^{k_1+k_2} G_{k_1k_2}^{q_1q_2*} \tag{3.11}$$

Dies impliziert, dass G reell ist, wenn $k_1 + k_2$ gerade und G imaginär, wenn diese Summe ungerade ist. In unpolarisierten Systemen, in denen die Parität erhalten bleibt, sind k_1 und k_2 einzeln gerade. Bei Messung mit einem Ringdetektor ist das System nicht polarisiert, d.h. G ist reell. Für ein gegebenes Produkt von Q und V_{zz} hängt die Präzessionsrichtung des Kernspins vom Vorzeichen des betrachteten M-Niveaus ab. So führt ein statischer symmetrischer EFG zu einer Superposition von gleich grossen und entgegengesetzten Präzessionen, was Effekte proportional zu $(\omega_0\tau)^2$ bewirkt. Dies bedeutet, dass mit einem Ringdetektor nur der Betrag der Quadrupolfrequenz ermittelt werden kann.

Unter der Annahme, dass der EFG axialsymmetrisch ist, kann die Quantisierungsachse parallel zur Symmetrieachse gewählt werden und man erhält für zeitintegrierte

Winkelkorrelationen aufgenommen mit einem Ringdetektor die folgenden einfachen Ausdrücke für die Attenuationskoeffizienten:

$$G^{qq}_{k_1k_2}(\infty) = \sum_n S^{k_1k_2}_{nq} \frac{1}{1+(n\omega_0\tau)^2} \tag{3.12}$$

mit:

$$S^{k_1k_2}_{nq} = \sum_m \begin{pmatrix} I & I & k_1 \\ m' & -m & q \end{pmatrix} \begin{pmatrix} I & I & k_2 \\ m' & -m & q \end{pmatrix} ((2k_1+1)(2k_2+1))^{1/2} \tag{3.13}$$

Für eine Wechselwirkung in einem polykristallinen Pulver mit statistisch verteilten EFG gilt die einfache Beziehung:

$$G_{kk} = (2k+1)^{-1}\left(1 + 2\sum_q G^{qq}_{kk}\right) \tag{3.14}$$

Im Falle kombinierter Wechselwirkungen ist eine explizite Darstellung nicht mehr möglich.

3.7. Vorzeichenbestimmung

In Kapitel 3.6 wurde festgestellt, dass bei Rückstreuung der Anregungsprojektile um 180°, das System nicht polarisiert werde und zu einer Bestimmung des Quadrates des Wechselwirkungsparameters führe. Durch eine ungleichmässige Population der M-Zustände bei der Anregung und der Messung mit einem seitlich der Strahlachse montierten Detektor, sind auch ungerade k_1 erlaubt und die Attenuationskoeffizienten $G^{q_1q_2}_{k_1k_2}$ besitzen einen imaginären Teil. In diesem Fall enthält die Winkelkorrelation auch Terme linear in $\omega_0\tau$ und eine Bestimmung des Vorzeichens ist möglich.

Nimmt man also zur Implantation der Kerne in den Einkristall eine Kernreaktion, deren Produkte polarisiert sind, so besteht die Möglichkeit gleichzeitig Grösse und Vorzeichen des Wechselwirkungsparameters zu bestimmen. Eine Technik, die die Coulombanregung auch als Polarisationsprozess vorsah, wurde vor mehreren Jahren schon vorgeschlagen. In letzter Zeit wurde der Tatsache, dass coulombangeregte Kerne zu einem wesentlichen Teil polarisiert sind, wenn die rückgestreuten Teilchen unter Streuwinkeln um $\theta_p \sim 90°$ registriert werden, mehr Beachtung geschenkt.

Unter der Voraussetzung, dass die Symmetrieachse des EFG senkrecht zur Streuebene liegt, kann nach Ref. [14] die Winkelkorrelationsfunktion folgendermassen geschrieben werden:

$$W(\theta', \Phi') = g^e_{00}(\theta') + g^e_{04}(\theta')\cos 4\Phi' + g^e_{42}(\theta')\frac{(1+(p4\omega_0\tau)^2)^{1/2}}{1+(4\omega_0\tau)^2} * \cos 2(\Phi' - \delta) \tag{3.15}$$

wobei p der Polarisationsgrad bedeutet und die Phase δ gegeben ist durch:

$$\delta = 1/2\tan^{-1}(p4\omega_0\tau) \tag{3.16}$$

Bei Beschränkung auf Störungsrechnung erster Ordnung kann p durch Orbitalfunktionen ausgedrückt werden:

$$p = \frac{I_{22}(\vartheta, \xi) - I_{2-2}(\vartheta, \xi)}{I_{22}(\vartheta, \xi) + I_{2-2}(\vartheta, \xi)} \tag{3.17}$$

Die Koeffizienten g^e in Gleichung (3.15) werden aus den Korrelationskoeffizienten im sogenannten Focal-System berechnet.

4. Theoretische Aspekte der Quadrupolwechselwirkung

In diesem Abschnitt sollen die wichtigsten Eigenschaften quadrupolgestörter zeitintegrierter Winkelkorrelationen beschrieben werden.

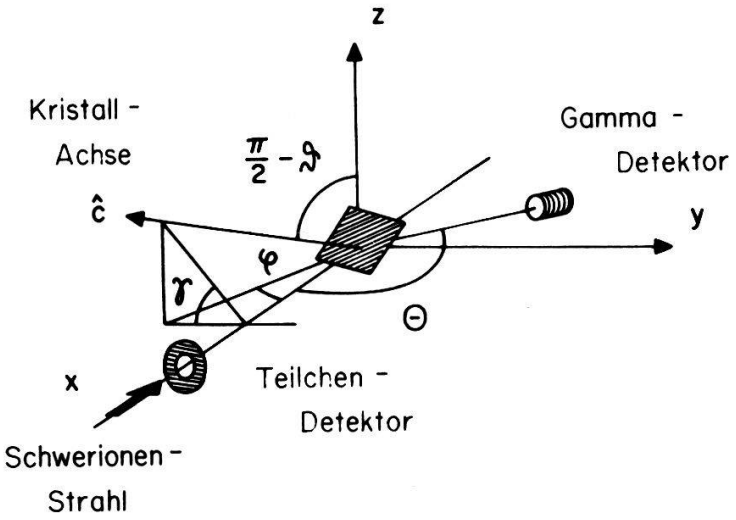
1) Liegt die Symmetrieachse des EFG parallel zu einer der Strahlungsrichtungen $\vec{k}_1$ oder $\vec{k}_2$, so folgt aus der Orthogonalitätsrelation der $3-j$ Symbole in Gleichung (3.10): $G^{qq}_{k_1k_2}(t) = \delta_{k_1k_2}$, d.h. die Winkelkorrelation bleibt ungestört.
2) Eine axialsymmetrische Quadrupolwechselwirkung verändert die Winkelkorrelation auch dann nicht, wenn $\vec{k}_2$ senkrecht zu der Symmetrieachse steht. Man kann nämlich zeigen, dass $\Delta m = \pm 1$ verboten ist, und nur $\Delta m = 0, \pm 2$ erlaubt. Unter diesen Auswahlregeln gehen gerade m Zustände wieder in gerade und ungerade m Zustände wieder in ungerade über, wodurch die gesamte Besetzung der Unterzustände nicht verändert wird, was nichts anderes bedeutet, als dass keine Störung der Dichtematrix eintritt. Es gilt allgemein: Wenn eine $2^+ - 0^+$-Strahlung senkrecht zur Symmetrieachse emittiert wird, bleibt jede Winkelkorrelation unbeeinflusst von einer Quadrupolwechselwirkung, unabhängig davon, in welche Richtung der andere koinzidente Strahl läuft oder von welchem Spinzustand er kommt. Diese Tatsache kann verwendet werden, um Beimischungen anderer Wechselwirkung auszuschliessen.
3) Charakteristisch für die Quadrupolwechselwirkung sind auch sogenannte hardcores. Dies bedeutet, dass die Störung für $\omega_0\tau \to 0$ und grosse $\omega_0\tau$ gegen einen Grenzwert strebt. Dies limitiert den Anwendungsbereich, wie früher schon erwähnt wurde auf den Bereich $0{,}1 \leqslant \omega_0\tau \leqslant 1{,}0$.
4) Neben den geometrischen Anordnungen, die unabhängig von $\omega_0\tau$ sind, existieren auch solche bei denen eine Verstärkung oder eine Abschwächung der Intensität bezüglich der ungestörten Winkelkorrelation bewirkt wird. Man kann also die Wahl der geometrischen Anordnung der Stärke der Wechselwirkung anpassen.

5. Messanordnungen

Figur 4 zeigt die schon definierten Winkel θ, ϑ und φ zusammen mit der experimentellen Anordnung. Das Ziel liegt vorerst darin, möglichst eindeutige und empfindlich gestörte Winkelkorrelationen zu finden. Man kann grundsätzlich zwischen folgenden möglichen Messanordnungen unterscheiden:

1) Messung in Funktion von θ bei fester Kristallachse.
2) Messung in Funktion der Kristallorientierung bei festen Detektorenpositionen.
3) Kristall- und Detektorenlage simultan verändert.

Die Messungen sollen je nachdem als θ-, ϑ-, φ- oder γ-abhängig bezeichnet werden. Bei einer Messung in Funktion von γ wird der Kristall um die Strahlachse rotiert.



Figur 4
Experimentelle Anordnung und Definition der Winkel.

Als δ-Messung gelte eine Messung, wenn der Winkel $\delta = \theta - \varphi$ konstant bleibt, d.h. wenn Detektor und Kristall im gleichen Drehsinn um den gleichen Winkel gedreht werden.

5.1. Feste Kristallachse

Im folgenden sollen die spezifischen Vor- und Nachteile der erwähnten Messanordnungen kurz aufgezählt werden. Eine wichtige Kategorie von Messungen sind jene, bei denen die Kristallachse $\hat{c}$ fest bleibt und in Funktion von θ gemessen wird. Zwei wichtige Spezialfälle erhält man, wenn die Achse $\hat{c}$ parallel zum primären Teilchenstrahl oder senkrecht zum auslaufenden Gammastrahl liegt. In beiden Fällen bleibt die Winkelkorrelation von einer statischen axialsymmetrischen Quadrupolwechselwirkung unbeeinflusst. Die ungestörte Winkelkorrelation wird also am besten mit $\vartheta = 90°$ aufgenommen, da dann der Kristall simultan mit dem Detektor gedreht werden kann, so dass keine Korrekturen für die Absorption der Strahlung im Backing anfallen. Die Messung der ungestörten Funktion ist unerlässlich, um die statistischen Tensoren $t_{k_1 q_1}(0)$ und die Raumwinkelkorrekturen zu kontrollieren und um mögliche zusätzliche Wechselwirkungen ausser der elektrischen mit dem Quadrupolmoment zu eruieren. Die Figuren 5a und b zeigen andere Winkelverteilungen bei festem $\hat{c}$. Alle diese Messungen haben gemeinsam, dass sie schwierig zu interpretieren sind, da ihre gesamte Information im Verhältnis zwischen Maximum und Minimum steckt. Jede Superposition von Wechselwirkungen und auch systematische Fehler wie die Absorption sind aber imstande den gleichen Effekt zu bewirken. Es ist unerlässlich, dass solche Messungen zusammen mit kristallachse-abhängigen analysiert und ausgewertet werden, die mit dem gleichen Kristall durchgeführt werden.

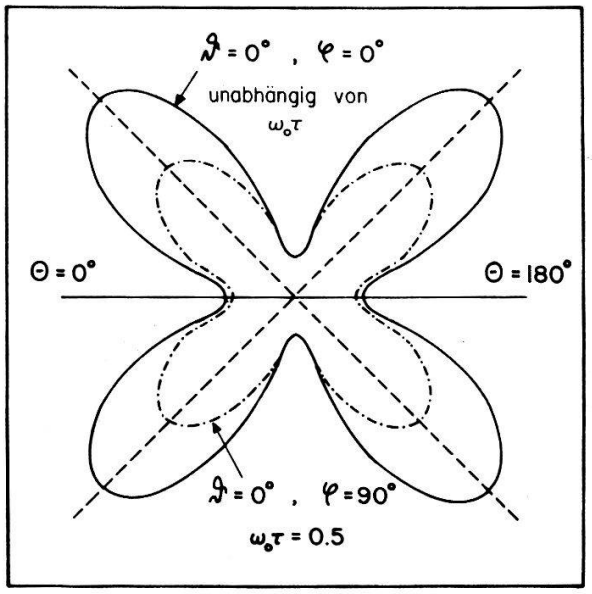
5.2. Feste Detektorenpositionen

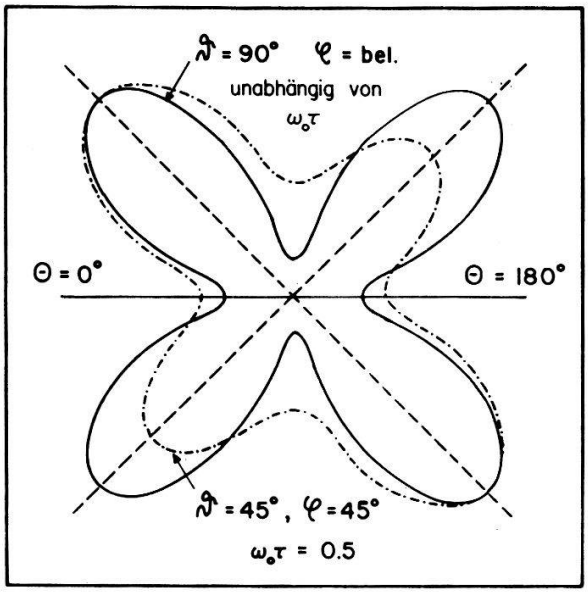
Indem man die Detektoren fest lässt und die Winkel ϑ und φ variiert, erhält man theoretisch sehr empfindlich vom Parameter $\omega_0\tau$ abhängende Messungen. Leider müssen bei diesen Experimenten vermehrt Korrekturen für Absorption und Änderung der Detektor-Target-Abstände berücksichtigt werden. Es muss stets versucht werden, geometrische Konfigurationen zu finden derart, dass die Absorption der γ-Strahlung, die bei Energien von 100–200 keV recht gross sein kann, in vernünftigen Grenzen bleibt. Dies ist in den IMPAC Messungen mit dicken Backings einer der am schlechtesten kontrollierbaren Faktoren.

Es hat sich auf Grund der experimentellen Resultate gezeigt, dass die Messungen in Funktion von γ am geeignetsten sind, eindeutige, durch eine statische Quadrupolwechselwirkung gestörte Korrelationen aufzuzeigen. Da jeder andere Effekt sich nicht in Funktion von γ ändern sollte, also höchstens einen konstanten Untergrund ergeben dürfte, sind solche Messungen besonders ausschlaggebend in der Beurteilung von Hyperfeinwechselwirkungen.

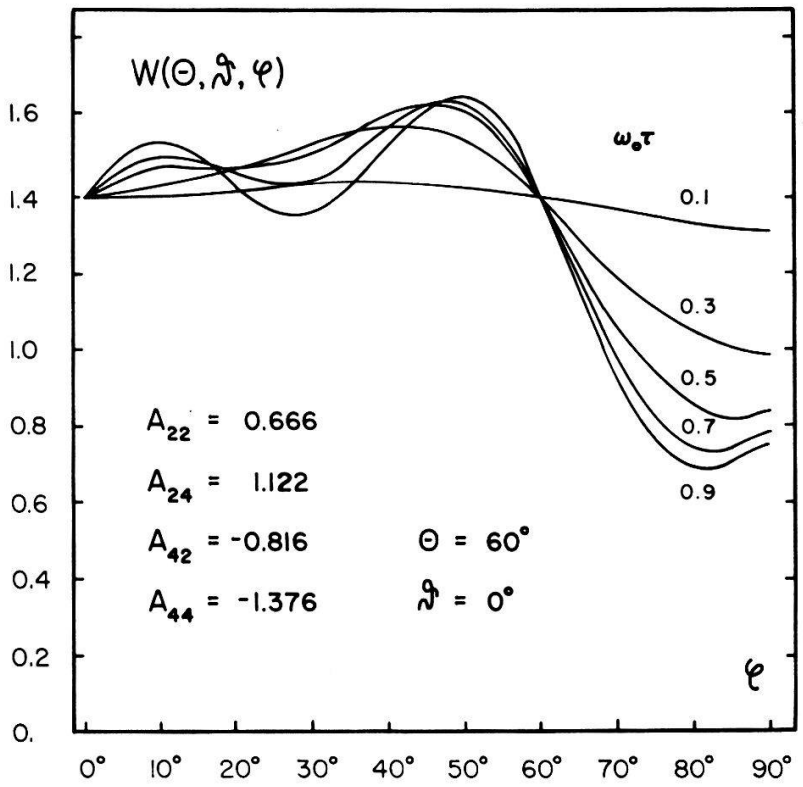
6. Theoretische Berechnungen

Basierend auf Formel (3.5) wurden mit Hilfe eines Computerprogrammes als Funktion der Variablen A_{22}, A_{24}, A_{42}, A_{44}, θ, ϑ, φ und $\omega_0\tau$ gestörte Winkelkorrelationen berechnet. Dadurch liessen sich einerseits günstige experimentelle Konstellationen von Detektoren und Kristallposition ermitteln, andererseits konnte der Einfluss von

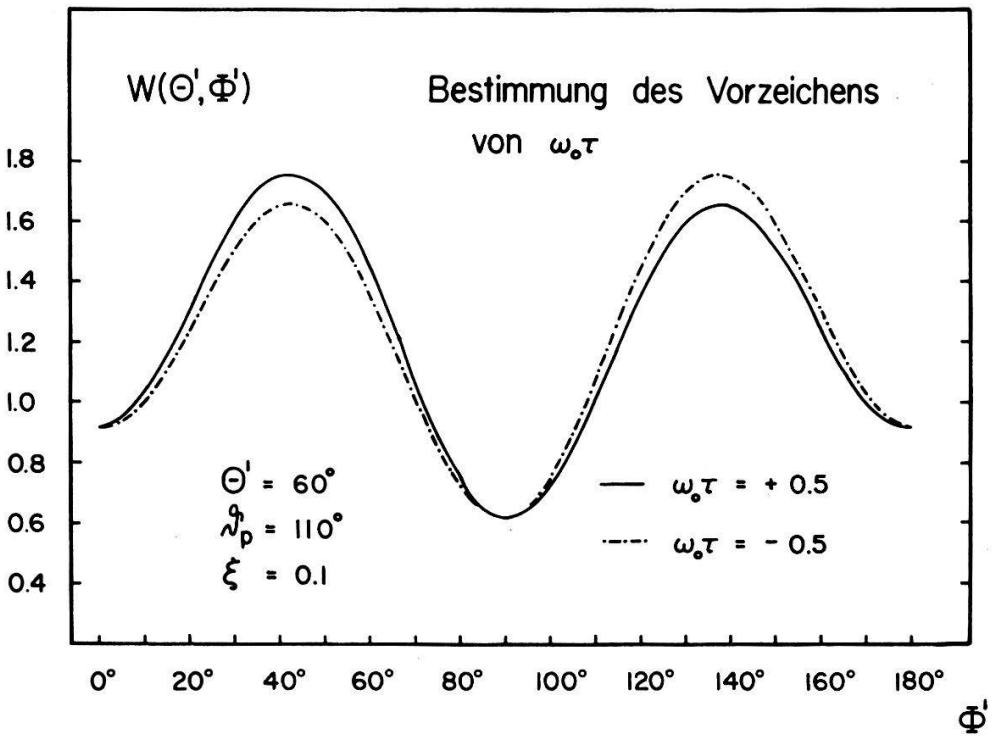




Figur 5a, b
Theoretische Berechnungen der Winkelkorrelationsfunktion als Funktion von θ bei verschiedenen Positionen von $\hat{c}$, festgelegt durch ϑ und φ.



Figur 6
Störung der Winkelkorrelation durch eine statische axialsymmetrische Quadrupolwechselwirkung als Funktion von φ.



Figur 7
Asymmetrisches Verhalten der Winkelkorrelation berechnet für beide Vorzeichen von $\omega_0 \tau$ bei Rückstreuung der schweren Ionen um 110°.

Störungen, verursacht durch Asymmetrie des EFG, Superposition anderer Wechselwirkungen, z.B. zeitabhängiger oder polykristalliner oder eine räumliche Verteilung von EFG studiert werden. Solche Berechnungen sind in verschiedenen Darstellungen in den Figuren 5–7 zu sehen. Figur 6 macht deutlich, um wieviel sensibler eine Messung ist, bei welcher der 2-0-Übergang unter einer festen Richtung bei variabler Kristallorientierung registriert wird. Figur 7 zeigt eine Winkelkorrelation, die auch vom Vorzeichen von $\omega_0\tau$ abhängt, indem die Polarisation nach einer Coulombanregung ausgenützt wird.

EXPERIMENT

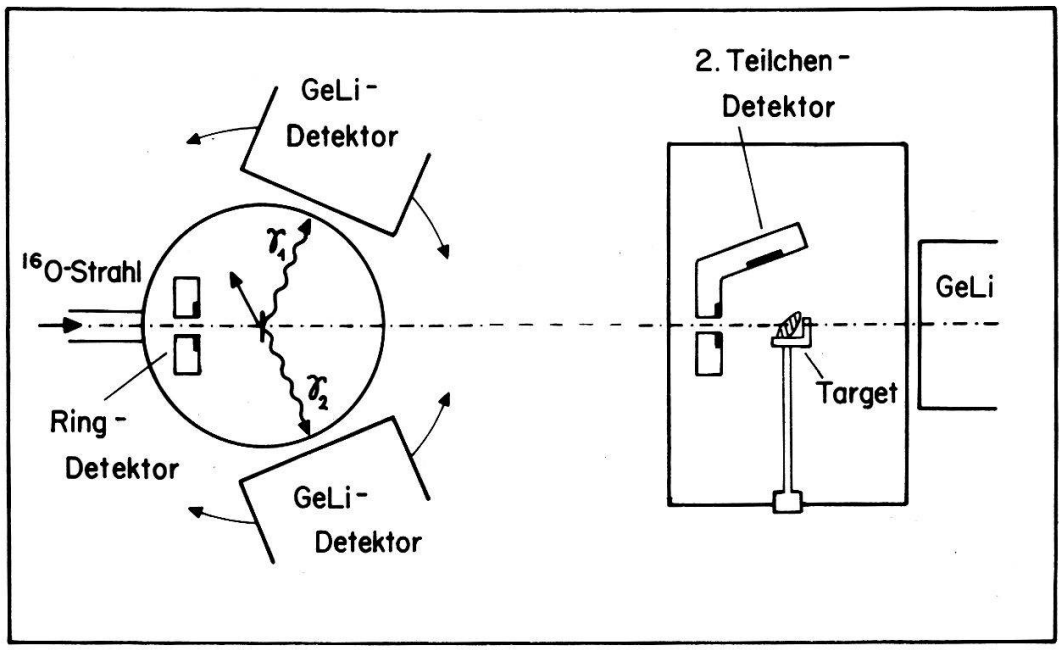
7. Experimentelle Ausrüstung

7.1. Streukammer und Detektoren

Eine zylinderförmige Streukammer mit einem Durchmesser von 10 cm und einer Höhe von 15 cm wurde zur Durchführung der meisten Messungen verwendet. Sie enthält neben dem zentral montierten Targethalter in Form eines kleinen auswechselbaren Goniometers zwei Halbleiter-Detektoren, einen Ringzähler um die Strahlachse und einen seitlich oder darüber angebrachten Teilchendetektor (Fig. 8). Das Target kann von aussen um verschiedene Achsen gedreht werden.

Vor der kleinen Streukammer ist ein einfaches Blendensystem angebracht, um den primären Teilchenstrahl auf eine Fläche von *ca.* 2 mm^2 auf dem Target zu kollimieren. Benützt wurden hochohmige Silizium-Halbleiterzähler mit einer Energieauflösung von ungefähr 25 keV. Sie sind fest montiert in einem Abstand von 20–30 mm vom Kristall. Zwei GeLi-Detektoren von 30 bzw. 35 cm^3 Volumen kommen zur Anwendung. Sie sind im Abstand von 60 mm vom Zentrum der Kammer im Winkelbereich $60° \leqslant \theta \leqslant 300°$ stufenlos einstellbar.

Die Experimente wurden ausschliesslich mit einem Strahl von 6-fach positiv geladenen ^{16}O-Ionen vom Tandem-Beschleuniger der ETHZ durchgeführt. Die

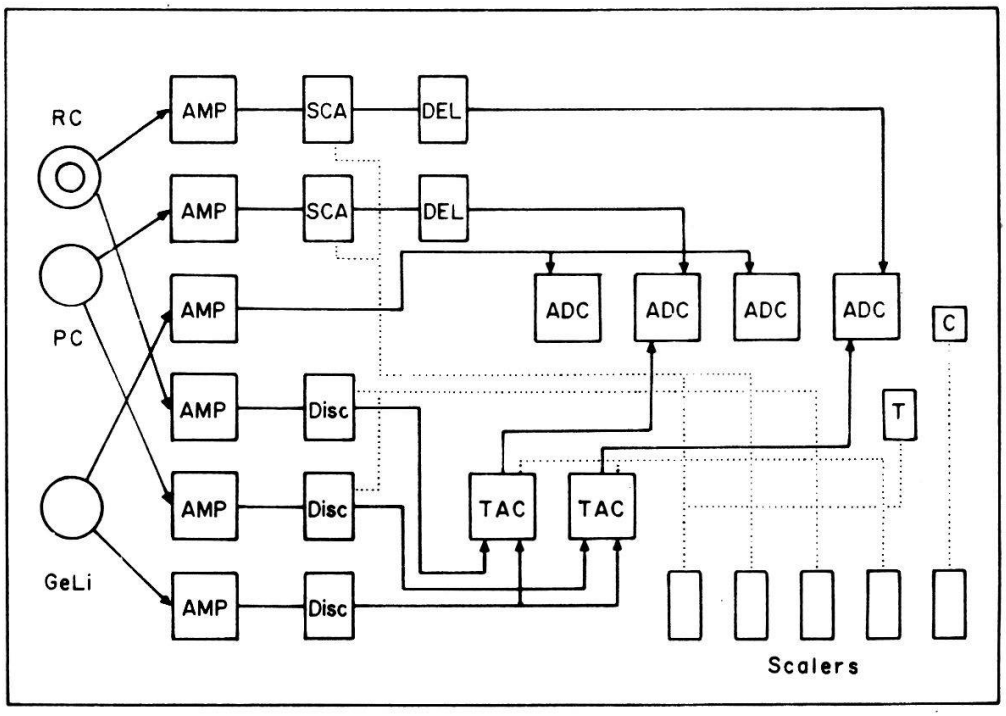


Figur 8
Aufsicht und Seitenansicht der experimentellen Anordnung bestehend aus Streukammer mit Targethalter und Halbleiterzählern und aussen montierten GeLi-Detektoren.

Energie der Sauerstoffionen betrug, abgesehen von wenigen speziell vermerkten Fällen, 40 MeV. In Abschnitt 9.4 wird die Zulässigkeit der Wahl dieser Energie der Projektile diskutiert werden. Als höchster zulässiger Strom wurde ein empirischer Wert von 25–40 nA festgelegt. Es muss verhindert werden, dass der Kristall an der bestrahlten Stelle lokal zu stark erhitzt wird. Ferner wurde auch darauf geachtet, dass die Teilchenintensität über der Fläche homogen und über die Zeit konstant blieb. Alle Messungen wurden bei Zimmertemperatur durchgeführt.

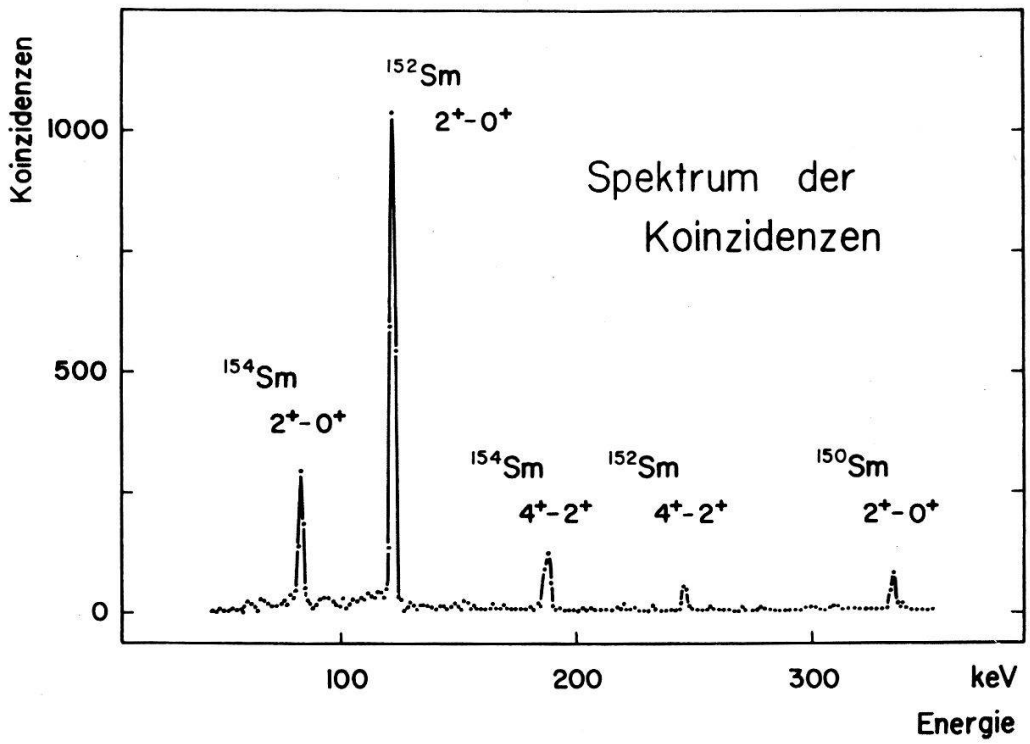
7.2. *Elektronik*

Figur 9 zeigt ein vereinfachtes Schema der Elektronik, wie sie in diesen Experimenten verwendet wurde. Die drei eingezeichneten Detektoren liefern je ein Energie- und ein Zeitsignal, die über schnelle und langsame Koinzidenzstufen zu den gesuchten Koinzidenzereignissen führen.



Figur 9
Schema der Elektronik für die IMPAC-Experimente mit Einkristallen. Es bedeuten: AMP (Verstärker), SCA (Einkanalanalysatoren), DEL (Verzögerungsstufen), DISC (schnelle Diskriminatoren), TAC (Zeit-Amplituden-Konverter) und ADC (Analog-Digital-Konverter).

Es werden Koinzidenzen aufgenommen zwischen den rückgestreuten Ionen, die in den Halbleiterzählern registriert werden, einerseits und den γ-Strahlungsübergängen, die mit den GeLi-Detektoren gemessen werden, andererseits. Die gesamten und die zufälligen Koinzidenzereignisse werden dabei simultan aufgenommen durch das Anbringen geeigneter Fenster im Zeit-Amplituden-Spektrum der schnellen Impulse. Verschiedentlich wurden auch Koinzidenzspektren für verschiedene Implantationstiefen der untersuchten Kerne in den Kristall registriert, indem im Energiespektrum der rückgestreuten Ionen mehrere Fenster gewählt wurden. Figur 10 zeigt ein typisches Spektrum für Sm auf Te nach der Subtrahierung der zufälligen Koinzidenzen. Die Akkumulation und Analyse der Daten wurde mit einem PDP-15 online System bewerkstelligt.



Figur 10
Messung von Koinzidenzen zwischen den rückgestreuten ^{16}O und den γ-Übergängen in den verschiedenen Sm-Isotopen nach Implantation in Te.

Im Zusammenhang mit diesen Messungen gestörter Winkelkorrelationen wurden folgende Computerprogramme erstellt:

1) ACF: Fortranprogramm zur Berechnung der theoretischen Winkelkorrelationen zur Optimierung der Messanordnung.
2) ASYM: Berechnung der Störungsfaktoren $G_{k_1 k_2}^{q_1 q_2}$ im Falle eines nicht axialsymmetrischen EFG.
3) HIDSIC: Foreground Akkumulations- und Überwachungsprogramm.
4) MINIB: Background Auswerte- und Korrekturprogramm.
5) FITCOR: Fortranprogramm zur Anpassung der berechneten Winkelkorrelationen an die Messdaten.

Ferner wurde übernommen:

6) DeBoer-Winther Programm für Coulombanregung höherer Ordnung [13].

8. Target und Backing

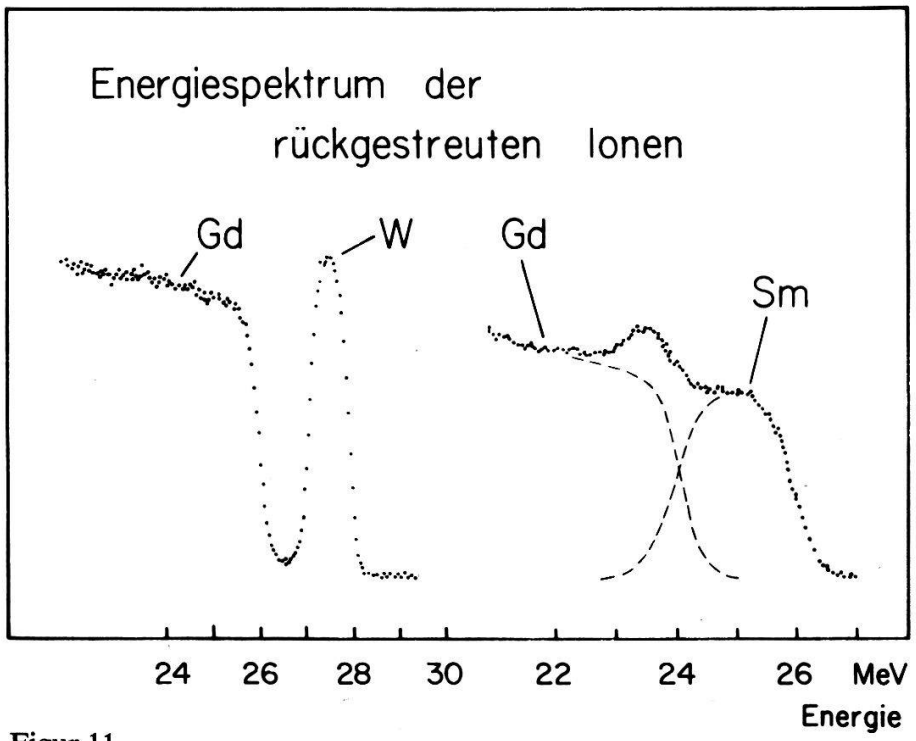
8.1. Wahl der Backings

Eine erste schwierige Aufgabe besteht darin, hochwertige orientierte Einkristalle auszulesen und zu beschaffen. Die Kriterien bei der Wahl sind die folgenden:

1) einfache Symmetrie
2) elektrische Leitfähigkeit
3) Ordnungszahl
4) Dichte

Es gilt allgemein die Regel, dass je niedriger die Symmetrie des Kristalls ist, umso grösser der EFG wird, da weniger Coulombkräfte sich gegenseitig aufheben.

Die Wahl fällt deshalb auf Kristalle hexagonaler Struktur, da in kubischen Kristallen kein EFG erwartet wird. Der Wunsch, dass alle implantierten Kerne im Gitter gleiche Plätze, wo dieselben Felder wirken, einnehmen sollen, führt zum Ausschluss komplizierter mehratomiger Kristalle. Auch Halbleiter eignen sich wegen der später diskutierten Strahlenschäden nicht. Bei der Auswahl von Target und Backing ist ebenfalls darauf zu achten, dass die Bedingung $Z_{Target} > Z_{Backing}$ wenn immer möglich erfüllt ist, damit die Trennung der rückgestreuten ^{16}O sauber durchgeführt werden kann (Fig. 11). Zuletzt soll auch die Dichte des Kristalls nicht unbeachtet bleiben, da die Absorption der γ-Strahlung häufig in Betracht gezogen werden muss. Aus technischen Gründen ist es überaus schwierig sehr dünne Einkristallschnitte mit parallelen Flächen herzu-



Figur 11
Zwei Beispiele von Energiespektren der rückgestreuten schweren Ionen beim Beschuss von W/Gd resp. Sm/Gd Target/Backings mit 40 MeV ^{16}O.

stellen, so dass Korrekturen für dicke Targets angebracht werden müssen.

Es gibt leider nur wenige Fälle, wo der Einkristall direkt angeregt werden kann, weil man einerseits stark deformierte angeregte Kerne haben möchte, andererseits eine einfache Kristallstruktur mit axialsymmetrischem EFG vorzieht. Ein einziges derartiges Experiment, nämlich mit Hf, ist bis heute durchgeführt worden [15]. Die Entscheidung fiel zugunsten der metallischen Einkristalle Te, Cd, Zn und Gd, die kommerziell erhältlich sind.

8.2. Herstellung der Backings

Nach der genauen Bestimmung der Symmetrieachse $\hat{c}$ des Kristalls mit Hilfe von Laue-Aufnahmen werden mit einer Funkenerosionsapparatur dünne Scheiben (Dicke 0,2–0,5 mm) abgeschnitten. Die Kristallscheibchen wiesen eine Fläche von mindestens 0,5 cm^2 auf und der Winkel zwischen Kristallachse und Flächennormale betrug entweder 0°, 45° oder 90°. Nach der Bearbeitung mit der Funkenerosionsmaschine weisen die Schnittflächen trotz der Benützung einer kleinen Schneidegeschwindigkeit, Krater von 10–20 μ Höhe auf, was ein weiteres Polieren notwendig macht. Bei Te und Gd, relativ harten Kristallen, wurde ein mechanisches Abschleifen

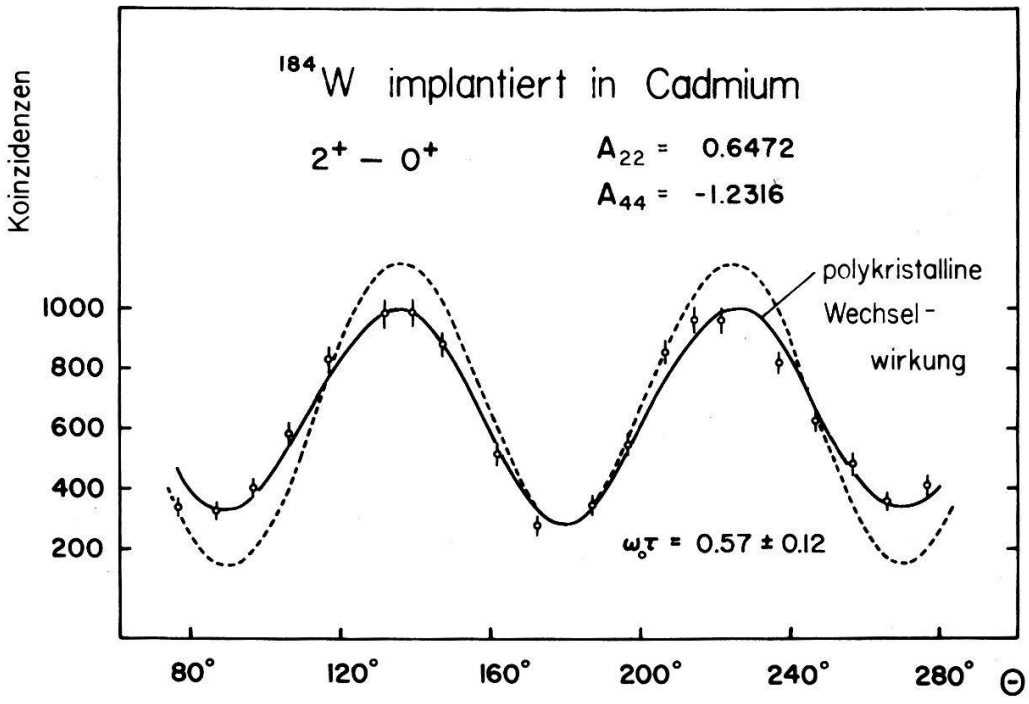
mit Diamantenpaste (bis minimal 1/10 μ Korngrösse) gewählt, was bei den leichter deformierbaren Cd und Zn Kristallscheibchen nicht möglich ist. Bei den letztgenannten Kristallen wurde mit gleichem Erfolg eine Elektrolyse mit Chromsäure oder ein Makroätzverfahren nach Palmerton [16] verwendet. Nach einer chemischen Reinigung der Oberfläche wurde die Lage der $\hat{c}$-Achse nochmals mit Laue-Diagrammen kontrolliert.

Eine der Haupschwierigkeiten, der man bei solchen IMPAC-Messungen mit Einkristallen begegnet, ist sicherlich die Bearbeitung der Oberfläche der Kristalle. Der Grad von Perfektion, der bei der Behandlung der Oberfläche erreicht wird, entscheidet letztlich darüber, ob im Experiment nur eine polykristalline Wechselwirkung beobachtet wird, oder ob die implantierten Kerne tief genug eindringen, damit der richtige EFG des Kristalls auf sie wirkt und somit die Wechselwirkung von der Kristallorientierung abhängt.

Eine Abschätzung für die Güte der Behandlung der Oberfläche des Backings ergibt sich aus der Berechnung der Reichweite der untersuchten Kerne. Ein 400 μgr/cm^2 dickes Wolframtarget sei aufgedampft auf einen Zink-Einkristall und werde mit einem ^{16}O-Strahl von 40 MeV Energie bestrahlt. Die Energie, welche auf die W-Kerne übertragen wird, beträgt je nach der Tiefe, in welcher sie angeregt werden 10,5–11,5 MeV, was diesen in Zn eine Reichweite von 1 bis 1,6 μ ermöglicht. Diese einfache Berechnung führt zu der empirischen Forderung, dass, wenn man eine genügende Sicherheitsmarge haben will, die aus verschiedenen Gründen beschädigte Oberflächenschicht nicht grösser als 1/10 μ sein sollte, damit die Wechselwirkung in kristallinem Milieu stattfindet und nicht in einer oxydierten und gesprungenen Schicht.

8.3. Aufbringen des Targets

Das Auftragen des Targetmaterials auf den als Backing verwendeten Kristall geschieht auf zwei verschiedene Arten, entweder indem das Material, nach einer weiteren Reinigung durch Glimmentladung mit Wasserstoff, in Vakuum aufgedampft



Figur 12
Die zerstörte Oberflächenschicht des Cd-Kristalls erzeugte eine polykristalline Wechselwirkung mit den implantierten W-Kernen. Die gestrichelte Linie gibt die statische Quadrupolwechselwirkung wieder.

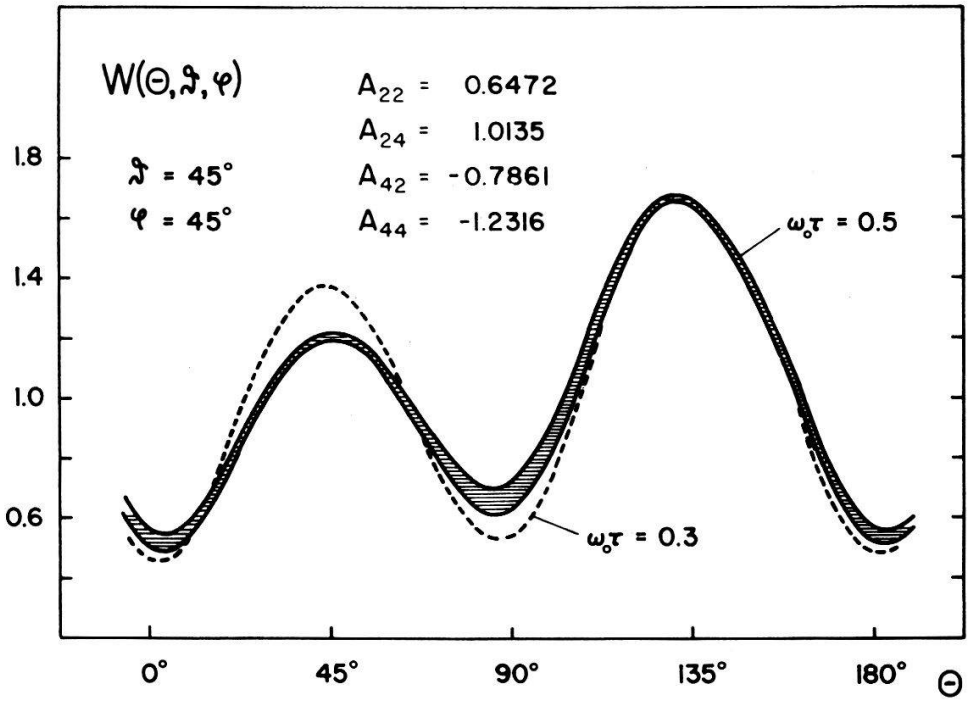
wird, oder indem eine dünne Folie des zu untersuchenden Elementes hergestellt wird. Die Wahl des Verfahrens wird durch die Empfindlichkeit des Kristalls und der Verdampfungstemperatur des Elements diktiert. Im allgemeinen werden Schichten von 250–400 μgr/cm^2 auf den gekühlten Kristallschnitt aufgetragen.

Die Oberfläche eines Einkristalles kann unwiderruflich zerstört werden, falls die Verdampfungstemperature des aufzudampfenden Elementes höher liegt als der Schmelzpunkt des Kristalls. Figur 12 zeigt eine Messung mit W und Cd, wo die Ursache für die Beobachtung einer reinen polykristallinen Wechselwirkung in dieser Tatsache zu suchen ist.

Es ist unerlässlich, dass bei jedem Experiment, in dem die Kerne durch eine Kernreaktion implantiert werden, eine mögliche Beimischung einer polykristallinen Wechselwirkung in Erwägung zu ziehen. Eine Analyse einer Superposition einer statischen elektrischen und einer polykristallinen Wechselwirkung ist vor allem im Falle einer Messung in Funktion von θ recht schwierig.

8.4. Justierung

Ein weiterer möglicher systematischer Fehler kommt von der Unsicherheit in der Bestimmung und Ausrichtung der Position der $\hat{c}$-Achse. Wie bereits erwähnt, ist der Kristall auf einem kleinen Goniometer montiert und die Winkel ϑ and φ können stufenlos verändert werden. Die Abweichung der Kristallachse von der vorgesehenen Lage wird in allen Fällen nach der Montage in die Kammer weniger als 5° betragen. Figur 13 zeigt an einer speziellen Winkelkorrelation den Einfluss der Unsicherheit der Lage von $\hat{c}$, wenn diese Achse auf einem Kegel mit Öffnungswinkel von 3° abgerollt wird. Durch die gleichzeitige Analyse mehrer Messungen kann der relative Fehler von $\omega_0\tau$ auf ein vernünftiges Mass von 5–10% reduziert werden.



Figur 13
Einfluss der ungenauen Justierung des Kristalls auf die Winkelkorrelation beim Abrollen der $\hat{c}$-Achse auf einem Kegelmantel mit 3 Grad Öffnungswinkel.

9. Kristallographische Betrachtungen

Dass die kristallographischen Aspekte dieser IMPAC-Experimente noch lange nicht erschöpfend untersucht wurden und heute verstanden sind, wiederspiegelt sich in allen bisherigen Veröffentlichungen auf diesem Gebiet. Die vorliegende Arbeit wird in dieser Richtung keinen entscheidenden Beitrag leisten. Es geht unter anderem um die Beantwortung der Fragen, welche möglichen Gitterplätze eingenommen werden, welcher Prozentsatz der Kerne eine statische Quadrupolwechselwirkung spürt, ob Strahlenschäden das kristalline Milieu schädigen und ob Leerstellen und Zwischengitteratome die Beobachtungen beeinträchtigen.

9.1. Implantationsmechanismus

Die schweren, durch Coulombwechselwirkung angeregten Kerne werden hauptsächlich durch die Wechselwirkung mit den Elektronen des Backings abgebremst. Erst am Ende des Abbremsprozesses spielen auch Kernstösse eine Rolle. Sicher werden dabei auch Gitteratome von ihren ursprünglichen Plätzen versetzt. Der implantierte Kern kommt dabei nach einer typischen Zeit von < 1 psec zum Stehen. In einer metallischen Umgebung mit relativ grosser Konzentration an freien Elektronen wird die Elektronenhülle innerhalb 10^{-11} sec wieder aufgebaut [17]. Während seiner Lebensdauer von der Grössenordnung von wenigen nsec wirken nun die umgebenden Felder auf das Quadrupolmoment des angeregten Kernzustandes.

9.2. Einbau in die Kristallstruktur

Die meisten Forscher scheinen sich darüber einig zu sein, dass die implantierten Kerne, in hexagonalen Kristallen wenigstens, eine Substitutionsreaktion eingehen, bei der sie Atome des Gitters verdrängen und ersetzen [18, 19, 20, 21, 22]. Der Fall der Einnahme von Zwischengitterplätzen scheint sehr selten einzutreten. Die Tatsache, dass die rückstossimplantierten Kerne den gleichen EFG spüren wie Gitterkerne bei Verwendung radioaktiver Quellen, zeigt ziemlich deutlich und eindeutig, dass die Wechselwirkung an Gitterplätzen stattfindet. Würde ein beträchtlicher Teil der Kerne auf Zwischengitterplätzen zum Stehen kommen, würde daraus sicherlich eine Verschmierung der Winkelkorrelation resultieren, speziell bei zeitabhängiger Betrachtung. Eine weitere Evidenz für die Tatsache, dass die betrachteten Kerne Substitutionsplätze einnehmen, ergibt sich aus der Symmetrie der Wechselwirkung und auch aus einer Serie von TDPAC-Messungen, die mit Cd-Verbindungen durchgeführt wurden [19]. Die Resultate zeigen deutlich die Abwesenheit einer Störung in allen kubischen Verbindungen, dagegen konnte in allen nicht-kubischen Verbindungen eine wohldefinierte quadrupolgestörte Winkelkorrelation ohne signifikante Frequenzverteilung oder Relaxation beobachtet werden. Dies alles lässt den Schluss zu, dass zum Zeitpunkt der Betrachtung des angeregten Zustandes, der Kern auf einem Gitterplatz lokalisiert sein muss.

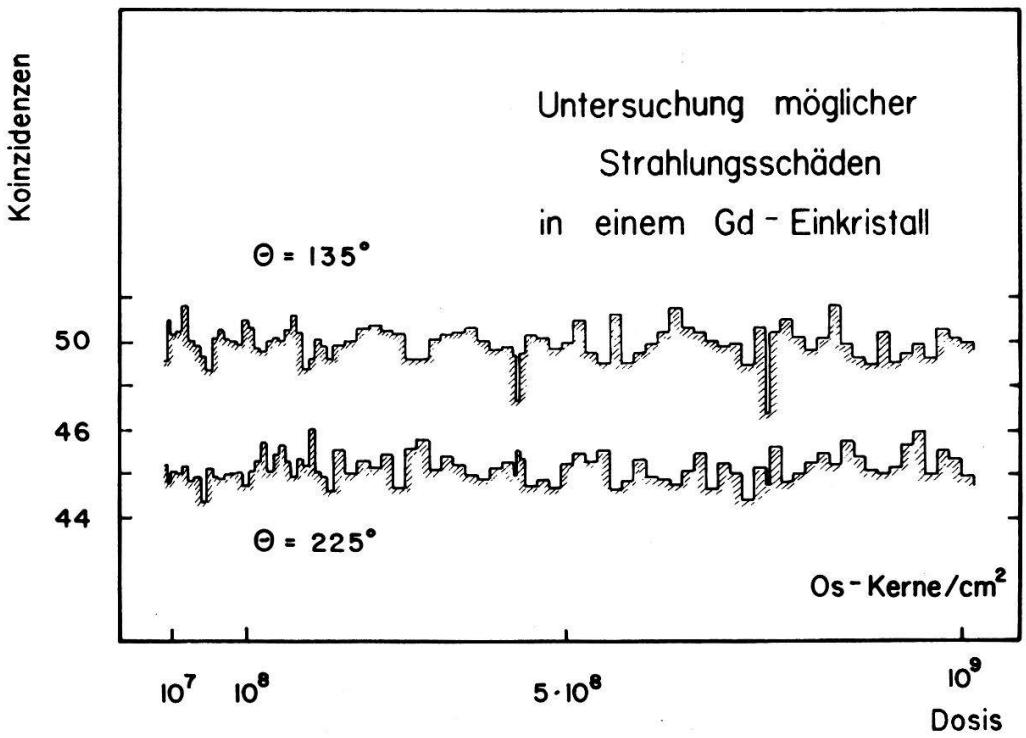
9.3. Strahlenschäden

Die Kontroversen beginnen erst recht, wenn die Frage nach der Anwesenheit und dem Einfluss von Strahlenschäden im Einkristall gestellt wird. Eine ganze Anzahl Publikationen behauptet, dass diese Effekte der Strahlung vernachlässigt werden können und dass die implantierten Kerne zum weitaus grössten Teil das ungestörte Einkristallmilieu vorfinden. Gestützt wird diese Behauptung durch Untersuchungen

der zu diesem Zweck vortrefflich geeigneten zeit-differentiellen Messungen mit Zuständen längerer Lebensdauer, wo die Intensität während der Wechselwirkung als Funktion der Zeit betrachtet werden kann und in denen klare Quadrupolstörung ohne Überlagerung bedeutender Relaxationseffekte zu sehen ist. Wurden solche Effekte gesehen, so waren sie mit Relaxationszeiten der Grössenordnung von mehreren μsec [17] verbunden, so dass daraus nur winzige Störungen innerhalb der Lebensdauer des Kernzustandes resultieren.

Es wird andererseits auch die Meinung vertreten, dass die durch Kernreaktionen implantierten Kerne eine strahlungsgeschädigtes Milieu antreffen. Untermauert werden diese Aussagen durch die Beobachtung von nichtverschwindender statischer Quadrupolwechselwirkung in kubischem Ag [17], was einerseits den Schluss zulässt, dass die Kerne auf Zwischengitterplätzen lokalisiert sind, andererseits aber auch eine Schädigung der Gitterstruktur widerspiegeln könnte. Wahrscheinlich liegt schon die zweite Ursache vor, denn die Kerne wurden mit $(\alpha,2n)$-Reaktionen mit hohen Strömen implantiert. Ferner ist die Übereinstimmung zwischen Experimenten, die mit radioaktiven Quellen durchgeführt werden, und solchen, die Implantation benützen, bei tieferen Temperaturen nicht mehr gut. Dies könnte durch ein Festfrieren der Fehlstellen in der nächsten Umgebung des Kernes während der Lebensdauer des Zustandes erklärt werden. Daraus resultierende zusätzliche EFG könnten durchaus für die Abweichung verantwortlich gemacht werden [17].

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ebenfalls versucht, auf die anfangs gestellten kristallographischen Fragen Stellung zu beziehen. Natürlich ist mit zeitintegrierten Messungen eine so subtile Untersuchung wie mit differentiellen nicht denkbar. Angesichts der Tatsache, dass in vielen Fällen eine deutlich von der Kristallorientierung abhängige statistische Quadrupolwechselwirkung beobachtet werden konnte, lag es auf der Hand, eine eventuelle Abhängigkeit von der Dosis der Bestrahlung



Figur 14
Untersuchung der Anwesenheit störender Strahlenschäden mit zwei zur Strahlachse symmetrischen Winkeln. Der Unterschied zwischen den beiden Zählraten ist durch die Quadrupolwechselwirkung gegeben und ändert sich nicht.

zu untersuchen. Es wurde deshalb für zwei Winkel, bei denen die Intensität stark vom Wechselwirkungsparameter abhängt, die Anisotropie als Funktion der Dosis gemessen. Kristalle wurden während 12–15 Stunden einem ^{16}O-Strahl von ungefähr 50 nA exponiert, was 10^9 Targetkernen und 10^{17} Sauerstoffkernen pro cm^2 entspricht. Figur 14 zeigt die Messresultate, in denen keine deutliche Änderung der Stossrate als Funktion der Dosis festzustellen ist. Es darf daraus geschlossen werden, dass Strahlenschäden unsere Betrachtungen nicht wesentlich verfälschen. Es ist kaum wahrscheinlich, dass sowohl der Primärstrahl wie auch die schweren rückgestreuten Kerne im Kristallgitter keine Schäden wie Produzierung von Leerstellen und Dislozierungen verursachen. Die Meinung ist aber diese, dass die wesentlich Schäden nicht in jener Tiefe liegen, die der Reichweite der implantierten Kerne entspricht. Der nicht reagierende Teil des primären Ionenstrahls dringt bis in eine Tiefe von 25 μ ein und gibt nur wenig Energie in der Tiefe von 1–2 μ ab, und auch dies fast ausschliesslich über die Elektronen des Bremsmaterials. Die schweren implantierten Kerne hingegen werden hauptsächlich durch Kernkollisionen zum Stillstand gebracht. Problematisch erscheint, was mit dem von seinem Gitterplatz 'vertriebenen' Kristallatom geschieht und ob dieses in genügend kurzer Zeit 'aus dem Blickfeld' verschwinden kann.

Zum Abschluss dieser Betrachtungen sei noch erwähnt, dass die bestrahlte Stelle des Kristalls häufig geändert wurde, um die Effekte der Strahlenschäden im Kristall auf jeden Fall zu minimalisieren.

9.4. Oberflächeneffekte

Als gefährlichste Schicht muss die Oberfläche betrachtet werden. Kerne, die dort zum Stehen kommen, mögen Umgebungen vorfinden, die ganz verschieden sind von der einkristallinen. Man kann feststellen, dass die Winkelkorrelationen für Kerne, die in verschiedene Tiefen implantiert werden, nicht gleich aussehen (Fig. 15). Aus Messungen in Funktion der Energie der Projektile wurde der Schluss gezogen, dass 40 MeV ^{16}O gerade an der unteren Toleranzgrenze liegt. Es muss also gewährleistet werden, dass Kerne diskriminiert werden, die zu wenig tief in den Einkristall eindringen, indem man im Energiespektrum geeignete Fenster wählt.

RESULTATE

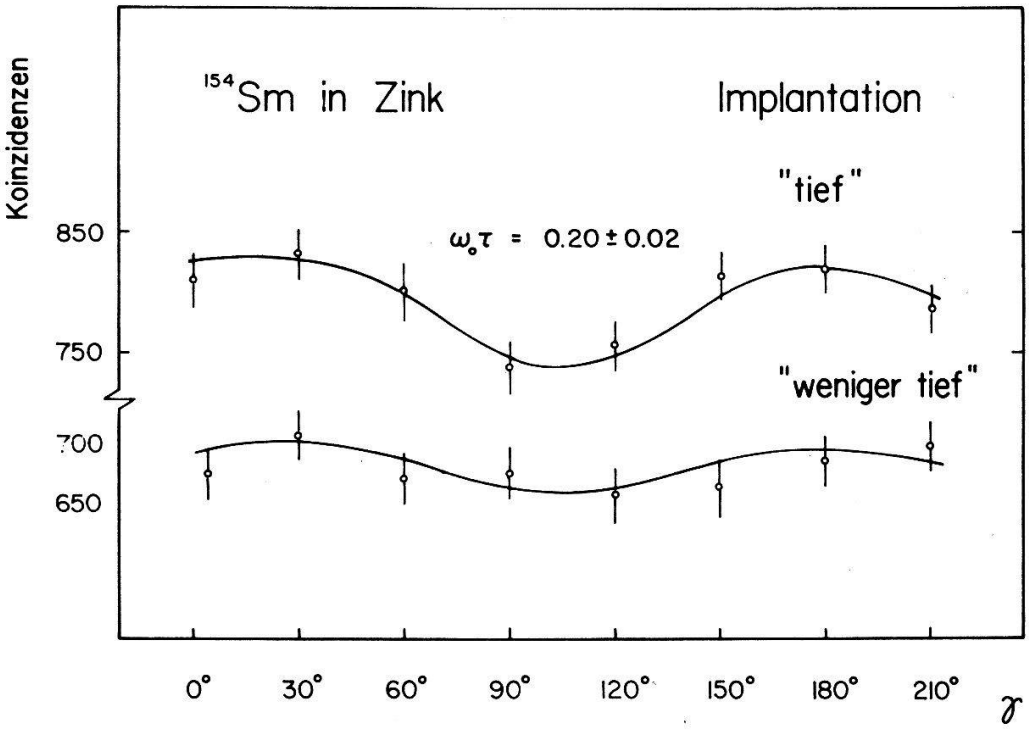
10. Bisherige IMPAC-Messungen mit Einkristallen

Tabelle I gibt einen Überblick über die Gesamtheit der bis Sommer 1974 veröffentlichten Messungen von Quadrupolwechselwirkungen in Einkristallen. Vom experimentellen Standpunkt aus gesehen, darf die Arbeit mit $^{178,180}Hf$ in Hf [15] als grundlegend betrachtet werden. Detailierte Untersuchungen über die Zuverlässigkeit der IMPAC-Methode und die Begrenzung ihrer Anwendung werden angegeben. Ein ähnliches Experiment wurde mit Wolframisotopen in Gd ausgeführt [23]. Auch hier wurden die rückgestreuten Teilchen in einem Ringdetektor registriert, so dass die Störung der Winkelkorrelation nur von Termen proportional zu $(\omega_0\tau)^2$ abhängt. Eine interessante Erweiterung stellte die Benützung der Coulombanregung zum Anregen und Polarisieren der Kerne und der Messung unter Streuwinkeln $\neq 180°$ dar [24], was die Bestimmung des Vorzeichens von Quadrupolmomenten gestattet. Ein weiteres schönes Experiment wurde in einem Cd-Einkristall durchgeführt unter Ausnützung der Polarisation nach einem β-Zerfall [25].

Tabelle I

Isotope	Kristall	Methode	Wechselwirkungs-parameter $\omega_0 \tau$	EFG V_{zz} (10^{17} V/cm^2)	Referenz
^{182,184,186}W	Gd	TIPAC mit Coulomb-anregung	0,30 ± 0,04 0,25 ± 0,04 0,26 ± 0,04	5,24 ± 1,0	[23]
^{186}W	Gd	,,	~ −0,5	~ +10	[24]
^{178,180}Hf	Hf	,,	0,34 ± 0,03	4,15 ± 0,38	[15]
^{180}Hf	Hf	,,	~ − 0,6	~ + 7	[24]
^{181}Ta	Hf	TDPAC	$\omega_0 \tau = 313 \pm 4$ MHz	5,50 ± 0,30	[30]
^{182,184,186}W	Zn	TIPAC mit Coulomb-anregung	0,61 ± 0,08 0,42 ± 0,04 0,33 ± 0,04	7,27 ± 0,57	[31]
^{152}Sm	Te	,,	0,15 ± 0,02	2,35 ± 0,56	[32]
^{154}Sm	Te	,,		2,85 ± 0,90	[33]
^{182,184,186}W	Te	,,	0,51 ± 0,09 0,56 ± 0,07 0,44 ± 0,09	8,30 ± 1,1	[34]
^{115}In	Cd	$\beta - \gamma$	$\nu_Q = +146$ MHz ($\nu_Q = eQV_{zz}/\hbar$)		[25]

Neben den in dieser Tabelle zusammengestellten Experimente verdienen noch eine Reihe differentieller Messungen von Quadrupolwechselwirkung in polykristallinen Backings besondere Beachtung. Diese Messungen beschränkten sich auf die beiden Kernzustände $5/2^+$ in ^{111}Cd und $3/2^+$ in ^{117}In, wegen ihrer langen Lebensdauer. Aus diesen Untersuchungen lassen sich folgende Aussagen zusammenstellen, die auch für die Interpretation der zeitintegrierten Messungen von Interesse sind:



Figur 15
Experimentell gefundener Unterschied in den Winkelkorrelationen für tief und weniger tief implantierte Kerne.

1) Die Quadrupolwechselwirkung ist unabhängig davon, ob die Kerne mit Coulombanregung [20] oder über eine (d,p)-Reaktion [26] implantiert werden, oder ob γ-γ-Korrelationen mit Hilfe radioaktiver Isotope [19, 27, 28, 29] untersucht werden.
2) Die Gitterkerne spüren den gleichen EFG wie implantierte Kerne, also müssen letztere tatsächlich Gitterplätze einnehmen [20].
3) Die Wechselwirkung ist von Temperatur und Druck abhängig.
4) Der aus bekannten Quadrupolmomenten berechnete EFG lässt sich nicht durch einen EFG resultierend aus den positiven Gitterrümpfen interpretieren.
5) Die restlichen Beiträge zum EFG, die von den Elektronen verursacht werden, sind speziell temperatur- und druckabhängig.
6) Eine Beschreibung durch einen einzigen axialsymmetrischen EFG ist möglich.

11. Experimentelle Resultate

11.1. Implantation in Cu-Folie

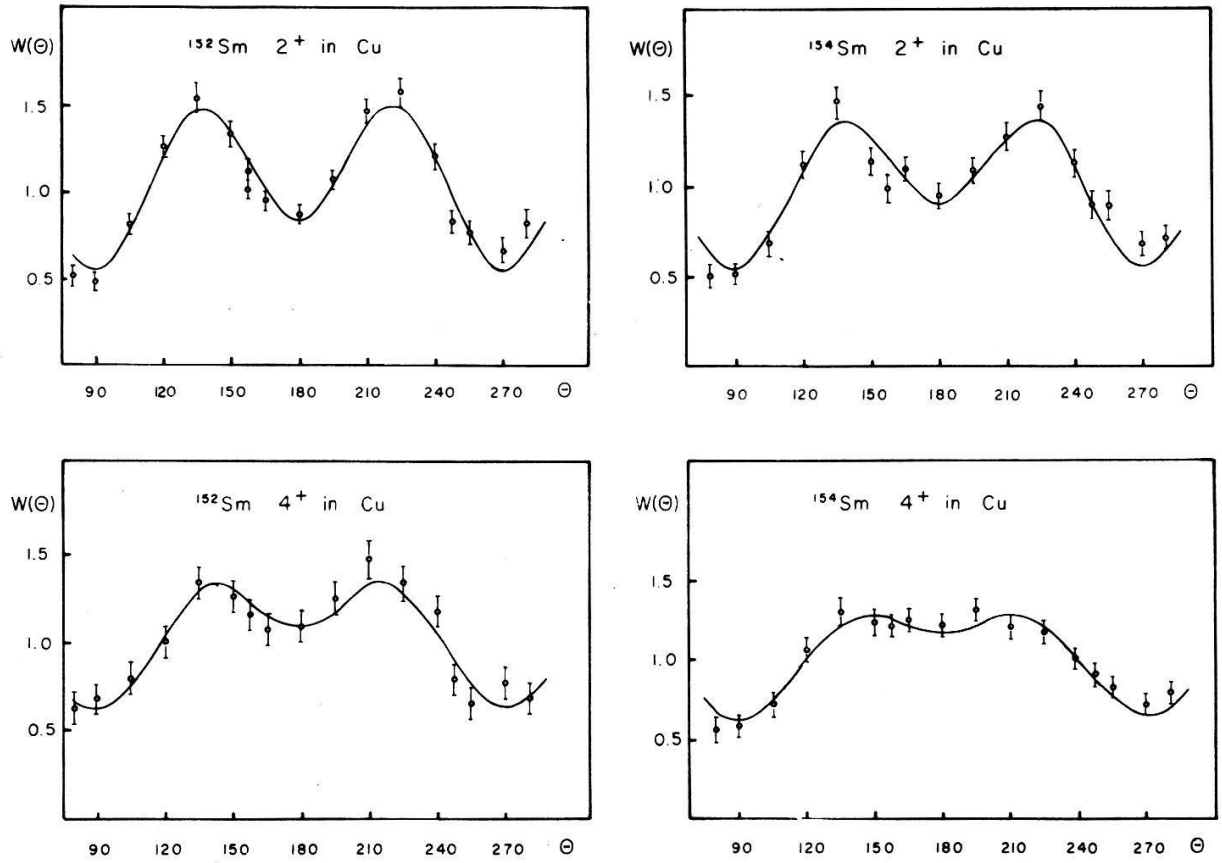
Als Kontrolle für das einwandfreie Funktionieren der gesamten Messapparatur, der Symmetrie der Anordnung und des Einflusses der endlichen Raumwinkel der verschiedenen Detektoren bei der gewählten kompakten Bauweise, wurden Messungen mit *ca.* 500 μgr/cm^2 W, Os bzw Sm auf Cu-Folien durchgeführt. Cu wurde gewählt, weil es kubische Struktur aufweist, die Winkelkorrelation also ungestört bleiben sollte. An die Messpunkte wurden Superpositionen von Legendrepolynomen angepasst:

$$W(\theta) = \sum_k A_k G_k P_k(\cos(\theta)) \tag{11.1}$$

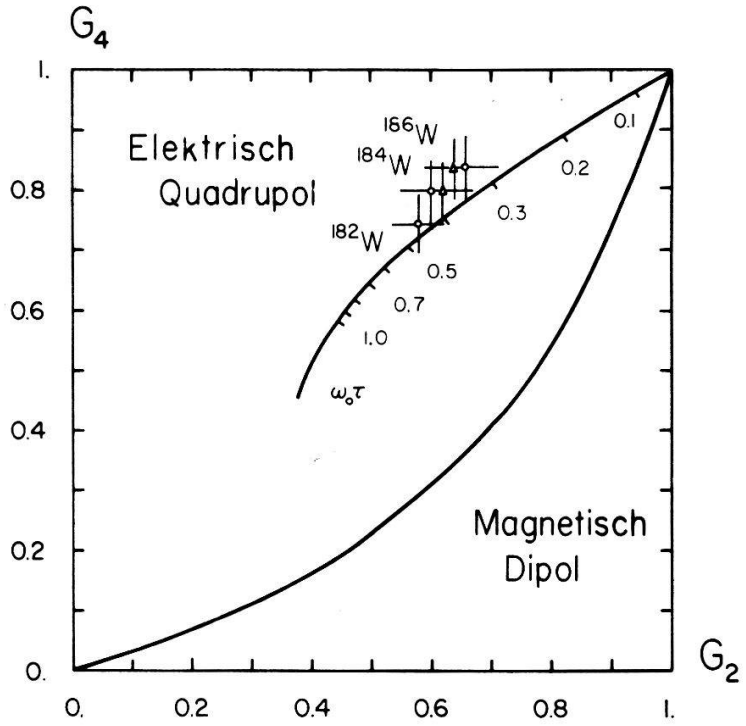
Die extrahierten Produkte von Korrelations- und Attenuationskoeffizienten $A_k G_k$ stimmen gut mit veröffentlichten Werten überein. Für die Isotope ^{182,184,186}W, ^{188,190,192}Os und ^{150}Sm errechneten sich für die 2^+-0^+-Übergänge Attenuationskoeffizienten, die innerhalb von Fehlergrenzen von 5% Eins ergaben. Das gleiche gilt für die 4^+-2^+-Übergänge in ^{152,154}Sm. Aus der γ-Strahlung vom ersten Rotationszustand in den Grundzustand der gleichen Isotope konnte auf eine starke magnetische Wechselwirkung in Kupfer geschlossen werden, was mit früheren Messungen [36] übereinstimmt. Der Quotient der g-Faktoren wurde zu $1{,}5 \pm 0{,}3$ errechnet. Es wurde kein Versuch unternommen, dieses Resultat zu verbessern.

11.2. Implantation in polykristallines Material

Bevor die Technik der Herstellung der kombinierten Target-Backings vollständig beherrscht wurde, zeigten die Winkelkorrelationen keine Abhängigkeit von der Kristallorientierung und die Quadrupolwechselwirkung wurde von einem überwiegenden Untergrund überlagert. Dies geschah vorwiegend mit den Einkristallen Te und Cd und konnte eindeutig auf die Zerstörung der kristallinen Struktur beim Aufdampfprozess zurückgeführt werden. Kristallographische Untersuchungen bestätigten, dass grosse Teile der Oberfläche von der Wärme des kondensierenden elementaren Wolframs geschmolzen waren. Verglichen mit der ungestörten Winkelkorrelation war die gemessene sehr stark attenuiert. Aus diesen Messungen wurden die Attenuationskoeffizienten G_2 und G_4 durch das Fitten der Daten mit einer Funktion nach Formel (11.1) erhalten. Figur 17 zeigt in einem Diagramm G_2 und G_4 für die beiden möglichen Wechselwirkungen in einem Pulver zusammen mit den gefundenen Messpunkten.



Figur 16
Kontrollmessung der ungestörten Winkelverteilung mit Implantation vom Sm-Isotopen in eine Cu-Folie.

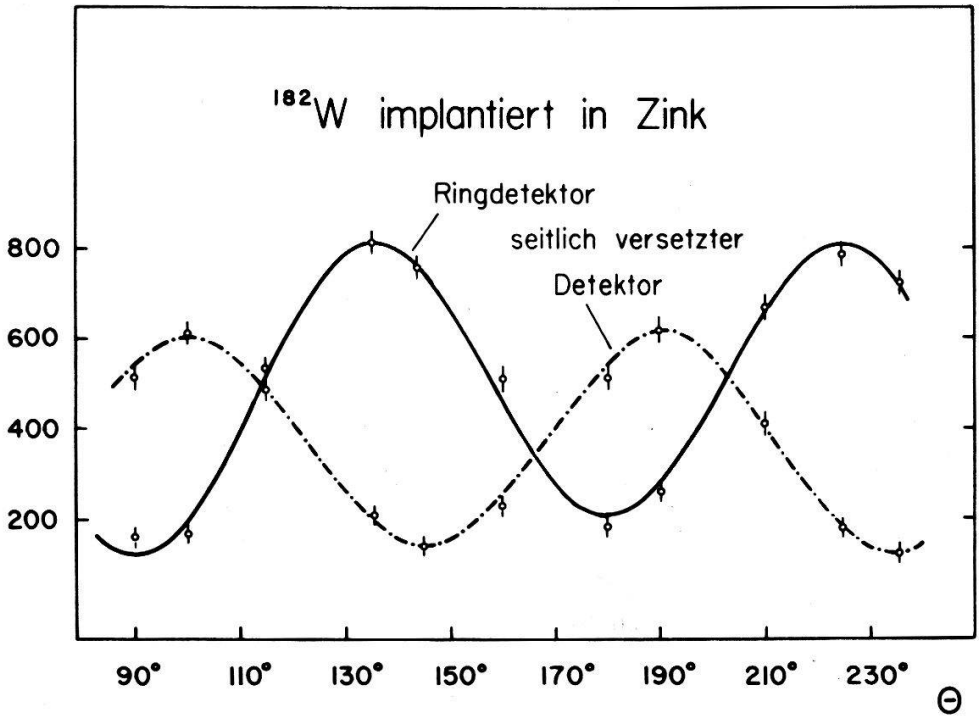


Figur 17
Experimentell ermittelte Attenuationskoeffizienten für die W-Isotope implantiert in Te mit 35 MeV (○) und MeV (△) ^{16}O zusammen mit theoretischen Berechnungen.

Die experimentellen Werte liegen leicht über der nach Formel (3.14) für Quadrupolwechselwirkung in polykristallinem Backing berechneten Kurve. Die daraus gewonnenen absoluten Werte von $\omega_0\tau$ und deren Verhältnisse sind in Einklang mit den später gefundenen Werten in Einkristallen.

11.3. Implantation in hexagonale Einkristalle

Wie in Kapitel 4 erwähnt muss die Winkelkorrelation ungestört bleiben, wenn die Kristallachse $\hat{c}$ entweder parallel zum primären Strahl oder senkrecht zur Detektorenebene steht, falls im Kristall nur ein statischer axialsymmetrischer EFG auf die implantierten Kerne wirkt. Figur 18 zeigt eine solche γ-Teilchen-Winkelverteilung für ^{182}W

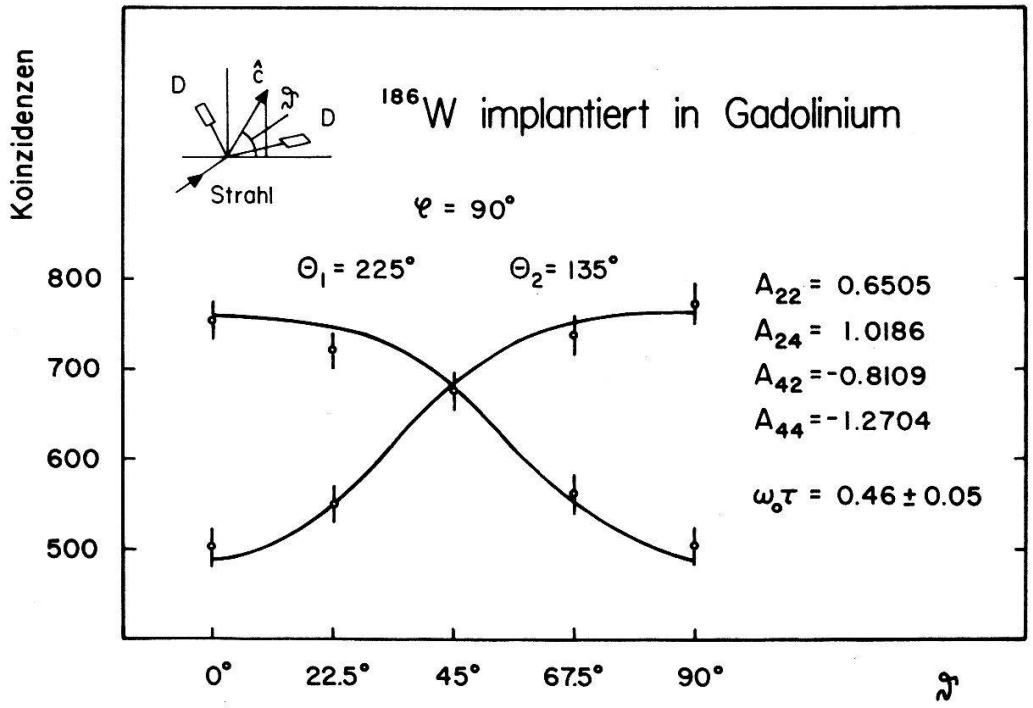


Figur 18
Experimentelle Aufnahme der ungestörten Winkelkorrelation für W in Zn mit zwei Halbleiterdetektoren.

in Zn, wobei die $\hat{c}$-Achse des Kristalls parallel zum einfallenden Ionenstrahl ausgerichtet war. Nicht immer war die Übereinstimmung zwischen den Daten und der theoretischen ungestörten Winkelkorrelationsfunktion berechnet mit den Korrelationskoeffizienten aus dem DeBoer-Winther-Computerprogramm so gut wie in diesem Beispiel. Die Diskrepanzen, in Form einer Attenuation, können durch viele Effekte verursacht werden, da die ganze Information solcher Messungen in Funktion von θ im Verhältnis von Maximum und Minimum steckt, welches durch vielerlei systematische Fehler verfälscht werden kann, die bereits aufgezählt wurden.

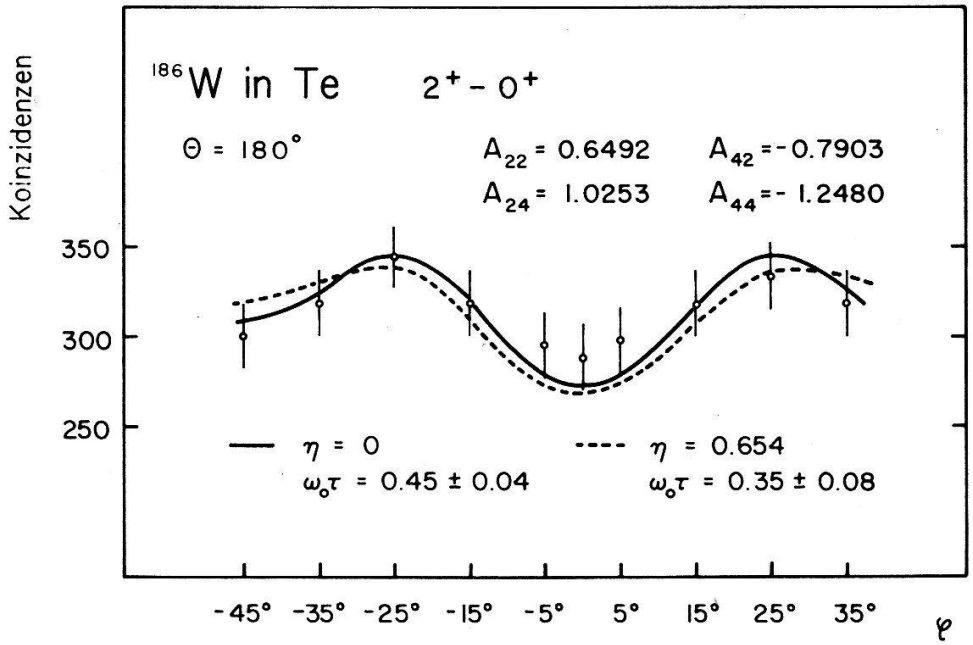
Wird nun bei fester Position der Detektoren die Kristallachse unter einem Winkel $\varphi = 90°$ von $\vartheta = 90°$ zu $\vartheta = 0°$, d.h. in die Detektorenebene geschwenkt, ergibt sich eine von der Theorie vorausgesagte quadrupolbedingte Attenuation der Intensität (vgl. Fig 5a). Figur 19 zeigt für das Isotop ^{186}W und den 122 keV-Übergang in den Grundzustand diesen Effekt in einem Gd-Einkristall, bei Registrierung der Strahlung unter zwei zur Strahlachse symmetrischen Winkeln.

Diese Messung zeigt schon deutlich die Überlegenheit von Messungen, bei denen die Lage der Kristallachse im Raum verändert wird. Experimente, die darin bestehen,

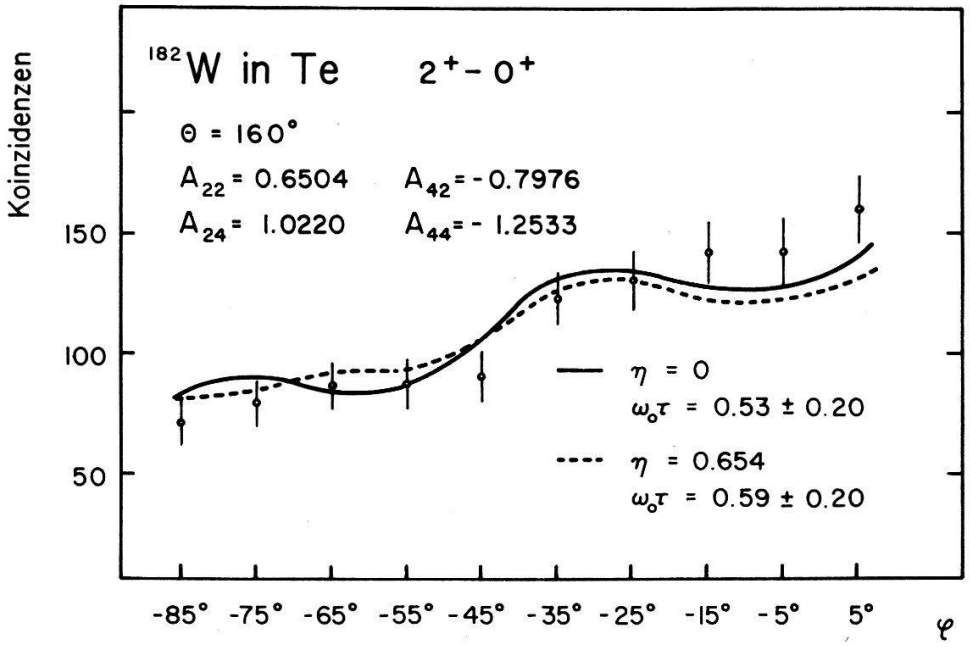


Figur 19
Experimentelle Ermittlung der starken Abschwächung der Intensität der 122 keV-Linie beim Übergang von $\vartheta = 0°$ zu $\vartheta = 90°$ unter $\varphi = 90°$.

die Intensität als Funktion von ϑ und φ zu untersuchen, sind sehr sensibel und charakteristisch für die Art der Wechselwirkung. Sie haben nur den Nachteil, dass sie mit zusätzlichen systematischen Fehlern behaftet sind. Wird zum Beispiel, wie in Figur 20 dargestellt, eine φ-Messung durchgeführt, kommt man leider nicht darum herum, sorgfältige Korrekturen für die Absorption der γ-Strahlung im Backing unter den verschiedenen Winkeln zu berücksichtigen. Auch diese Resultate zeigen deutlich, dass eine statische Quadrupolwechselwirkung zwischen dem Quadrupolmoment des angeregten 2^+-Zustandes und dem EFG in Te stattfindet. Bei Te gestaltet sich die

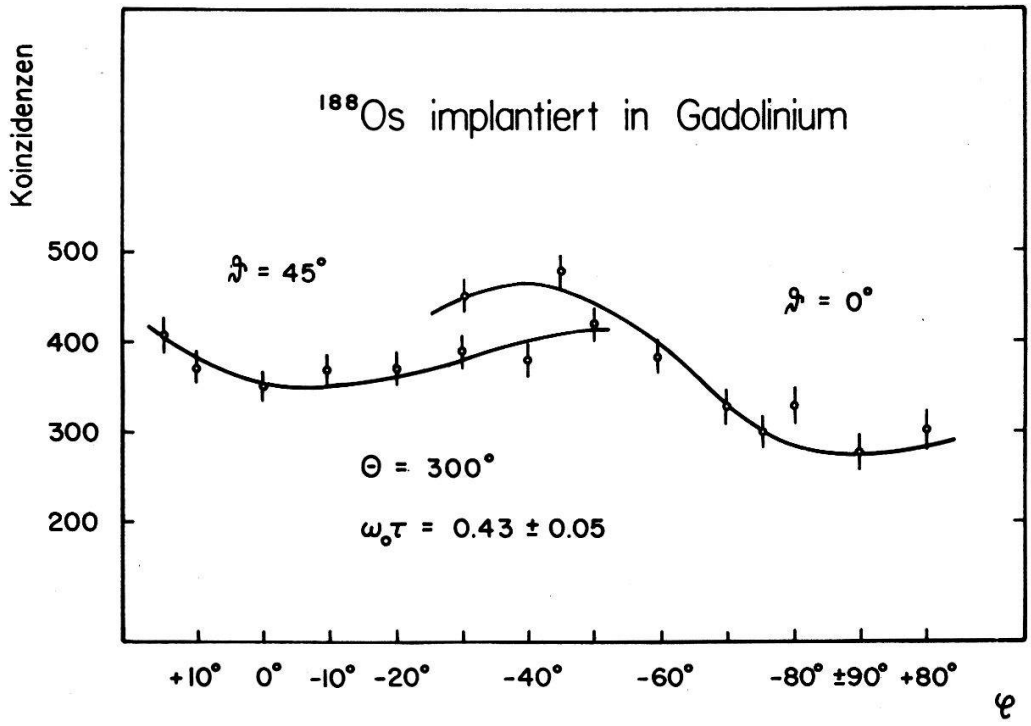


Figur 20a

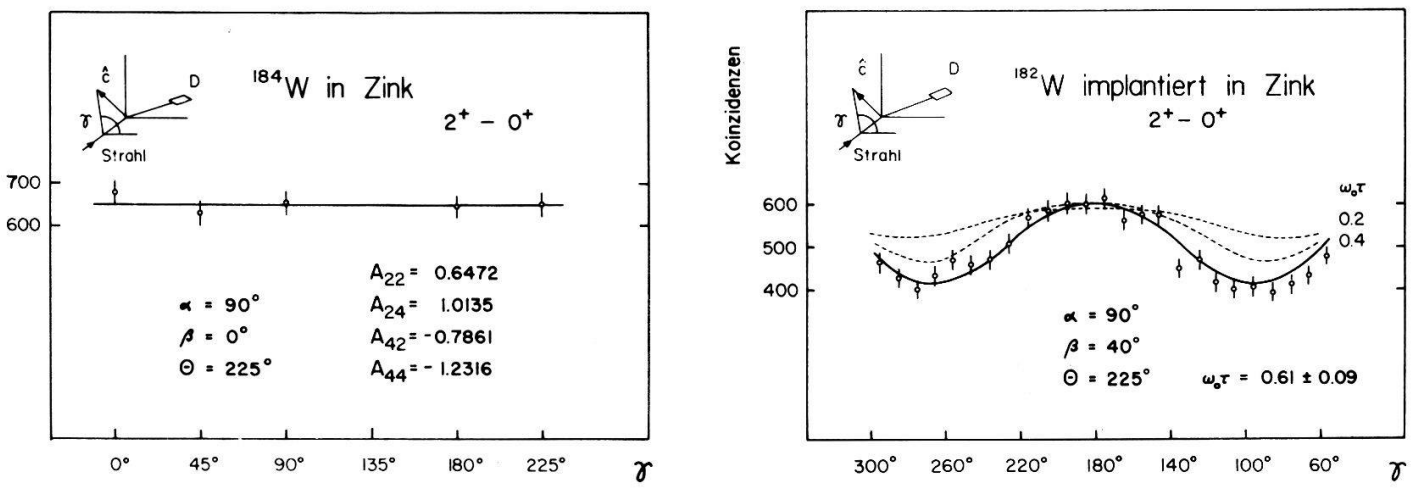


Figur 20b
Experimentelle Bestimmung der φ-Abhängigkeit für einen Te-Einkristall mit der $\hat{c}$-Achse in der Detektorenebene. Die Kurven stellen Fits mit Berücksichtigung eines kleinen Untergrundes für eine axialsymmetrische und eine asymmetrische Wechselwirkung dar.

Auswertung insofern etwas schwieriger, als einer Verschraubung des Kristalls Rechnung zu tragen ist, die bewirkt, dass $V_{xx} - V_{yy} \neq 0$ wird. Die Berechnungen wurden deshalb mit einem bekannten Asymmetriefaktor $\eta = 0{,}654$ durchgeführt. Eine simultane Extraktion von $\omega_0\tau$ und η aus solchen Messungen würde eine bedeutend höhere Statistik und Genauigkeit erfordern. Alle Messpunkte wurden bezüglich der im



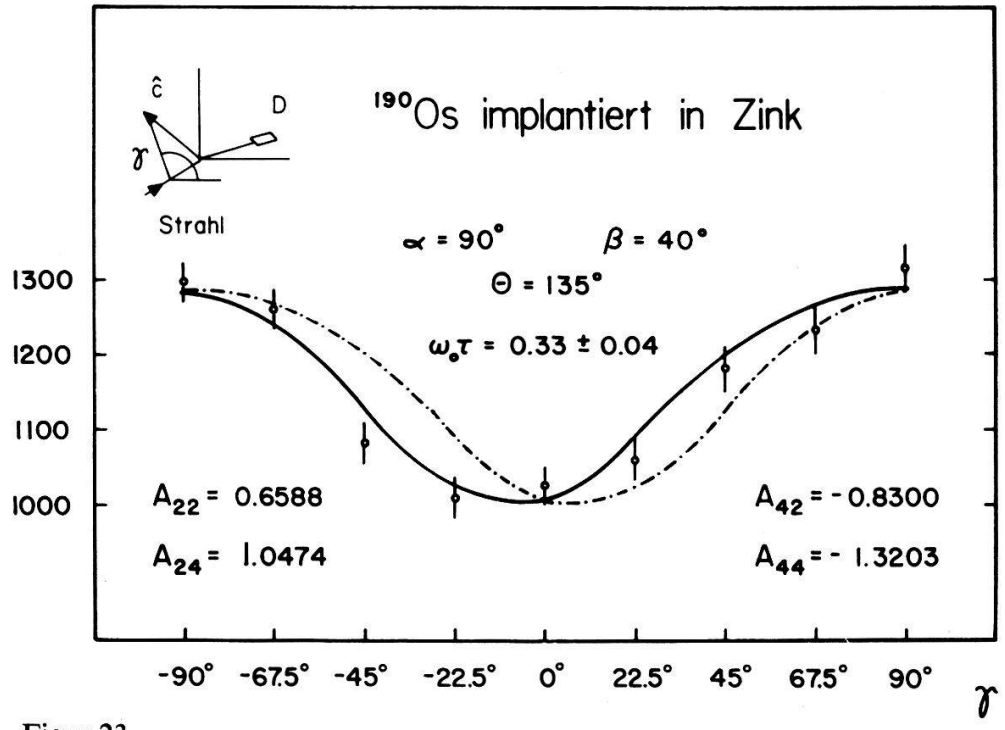
Figur 21
Messung der Winkelkorrelation in Funktion von φ für den 155 keV-Übergang in ^{188}Os implantiert in einen Gd-Einkristall.



Figur 22
Experimentell bestimmte γ-Abhängigkeit der Winkelkorrelation bei Rotation der Kristallachse $\hat{c}$ um die Strahlachse. Die zwei gestrichelten Kurven zeigen die Sensibilität dieser Methode.

Ringzähler registrierten Anzahl rückgestreuter Ionen innerhalb eines gesetzten Energiefensters normiert. Die Fits wurden unter Berücksichtigung eines konstanten Untergrundes erhalten. Auch die in Figur 21 dargestellten Messresultate belegen deutlich, dass die experimentell gefundenen Daten dem theoretisch vorausgesagten Verlauf einer quadrupolgestörten Winkelkorrelation folgen.

Zu den ausschlaggebenden Messungen an Einkristallen müssen jene gerechnet werden, bei denen ebenfalls bei festen Detektorenposition der Kristall um eine Achse parallel zum primären Strahl rotiert wird. In den meisten Fällen ist es möglich, weite Winkelbereiche ohne oder mit kleinen Korrekturen für die Absorption aufzunehmen. Der Winkel zwischen der Strahlrichtung und der $\hat{c}$-Achse wird gewöhnlich mit β



Figur 23
Deutliche Störung der Winkelkorrelation durch den axialsymmetrischen statischen EFG in Zink. Die ausgezogene Linie ist der Fit zu den Messdaten, die gestrichelte Linie wurde berechnet für den symmetrischen Punkt $\theta = 225°$.

Tabelle II
Quadrupolwechselwirkungs-Parameter $\omega_0 \tau$

Isotop	Variable	Te	Zn	Cd	Gd
^{182}W ^{184}W ^{186}W	θ (polykristal.)	0,43 ± 0,09 0,35 ± 0,04 0,31 ± 0,03		0,72 ± 0,20 0,52 ± 0,15 0,44 ± 0,12	
	φ	0,50 ± 0,10 0,46 ± 0,07 0,43 ± 0,05			
	ϑ		— 0,46 ± 0,05 0,40 ± 0,05		0,69 ± 0,10 0,48 ± 0,07 0,42 ± 0,05
	δ		0,62 ± 0,17 0,45 ± 0,08 0,29 ± 0,05	0,71 ± 0,15 0,46 ± 0,12 0,45 ± 0,10	0,48 ± 0,08 0,35 ± 0,04 0,30 ± 0,03
	γ		0,61 ± 0,09 0,41 ± 0,05 0,39 ± 0,06	0,55 ± 0,12 0,50 ± 0,12 0,39 ± 0,09	— 0,34 ± 0,05 0,32 ± 0,04
^{182}W ^{184}W ^{186}W	Mittelwert	0,45 ± 0,08 0,39 ± 0,05 0,36 ± 0,04	0,61 ± 0,08 0,44 ± 0,04 0,36 ± 0,03	0,63 ± 0,08 0,49 ± 0,07 0,42 ± 0,06	0,56 ± 0,06 0,38 ± 0,03 0,33 ± 0,02
^{152}Sm ^{154}Sm	ϑ	0,13 ± 0,03 0,17 ± 0,05	0,12 ± 0,02 0,18 ± 0,02	0,11 ± 0,02 0,18 ± 0,03	
	γ		0,11 ± 0,02 0,17 ± 0,02		0,15 ± 0,02 0,30 ± 0,04
	φ	— 0,23 ± 0,02	0,10 ± 0,03 0,18 ± 0,04		0,19 ± 0,03 0,26 ± 0,03
^{150}Sm ^{152}Sm ^{154}Sm	Mittelwert	0 0,13 ± 0,03 0,22 ± 0,02	0,05 0,11 ± 0,01 0,18 ± 0,01	0 0,11 ± 0,02 0,18 ± 0,03	0 0,17 ± 0,02 0,28 ± 0,03
^{188}Os ^{190}Os ^{192}Os	θ (polykrist.)	0,19 ± 0,02 0,10 ± 0,01 0,05 ± 0,03		0,18 ± 0,02 0,10 ± 0,01 0,05 ± 0,03	
	φ		0,36 ± 0,03 0,21 ± 0,03 0,10 ± 0,02		0,43 ± 0,05 0,19 ± 0,02 0,14 ± 0,03
	δ				0,32 ± 0,05 0,19 ± 0,04 0,12 ± 0,03
	ϑ		0,30 ± 0,05 — —		
	γ		0,43 ± 0,04 0,29 ± 0,03 0,23 ± 0,02		
^{188}Os ^{190}Os ^{192}Os	Mittelwert	0,19 ± 0,02 0,10 ± 0,01 0,05 ± 0,03	0,37 ± 0,03 0,25 ± 0,02 0,16 ± 0,02	0,18 ± 0,02 0,10 ± 0,01 0,05 ± 0,03	0,37 ± 0,04 0,19 ± 0,02 0,13 ± 0,03

bezeichnet. Wird nun der γ-Übergang unter irgendeinem Winkel θ, bei $\beta = 0°$ beobachtet, so darf die Intensität der 2^+-0^+-Linie nicht von der Orientierung des Kristalls abhängen, was das Experiment, in Figur 22a dargestellt, auch bestätigt. Da der grösste

Störeffekt für $\theta = 225°$ erwartet wird, wird die Messung sodann mit einem $\beta \neq 0°$ wiederholt (Fig. 22b). Man sieht aus dieser Messung, dass auch in Zn eine starke elektrische Quadrupolwechselwirkung stattfindet. Ausserdem belegt diese Messung die Empfindlichkeit dieser speziellen geometrischen Anordnung.

Eine ähnliche Messung ist in Figur 23 wiedergegeben. Hier erscheint sogar die theoretisch bestätigte Verschiebung des Minimums, da die Kristallachse nur um $\beta = 40°$ ausgelenkt war.

Tabelle III
Quadrupolfrequenzen ω_0 (MHz)

Isotop	Halbwertszeit (ns)	Te	Zn	Cd	Gd
^{182}W	1,37	226 ± 36	310 ± 44	319 ± 43	281 ± 30
^{184}W	1,26	202 ± 22	243 ± 25	270 ± 41	210 ± 17
^{186}W	1,01	227 ± 21	248 ± 20	289 ± 40	227 ± 15
^{188}Os	0,71	184 ± 15	362 ± 29	171 ± 15	362 ± 33
^{190}Os	0,37	180 ± 19	465 ± 38	180 ± 19	360 ± 42
^{192}Os	0,29	120 ± 70	384 ± 45	120 ± 70	315 ± 67
^{152}Sm	1,41	64,5 ± 15,3	52,2 ± 3,9	51,7 ± 11,3	82,7 ± 10,8
^{154}Sm	2,73	55,9 ± 6,1	44,5 ± 2,1	44,5 ± 7,4	70,7 ± 7,9

Tabelle II enthält die Gesamtheit der Resultate, die aus den erwähnten IMPAC-Experimenten in Te, Cd, Zn und Gd-Einkristallen durchgeführt wurden. Die angegebenen Werte sind vielfach schon Mittelwerte mehrfach durchgeführter gleicher oder ähnlicher Messungen. Man sieht, dass zwischen den einzelnen Messdaten für ein Isotop und ein Backing weitgehend Übereinstimmung herrscht. Manche Angleichungen wären noch möglich durch Veränderung des Untergrundes. Die Fehler sind gegeben durch die Summe der Unsicherheiten in den Raumwinkelkorrekturen der Detektoren, der Korrektur für die Absorption und der Fehler in der Position der Kristallachse. In Tabelle III sind sodann die Quadrupolfrequenzen ω_0 in MHz angegeben. Die erste Kolonne gibt die angenommenen Lebensdauern [37] der ersten Rotationszustände wieder.

12. Vorzeichenbestimmung

Aus der Sicht der Kernphysik ist neben der Bestimmung der Grösse des Quadrupolmomentes von angeregten Kernzuständen auch das Vorzeichen von Q, d.h. die Art der Verformung, ob linsenförmig oder zigarrenförmig, von wesentlichem Interesse. Auch bei Untersuchungen von EFG in Kristallen ist das Vorzeichen der Wechselwirkung ein wichtiger Bestandteil der gesuchten Information, legt doch erst dieses die Zerlegung des EFG nach Formel (2.14) eindeutig fest.

Wie in Kapitel 3.8 angegeben wurde, können unter speziellen Umständen die durch eine statische Quadrupolwechselwirkung gestörten Winkelkorrelationen auch zur Ermittlung von sign $(\omega_0 \tau)$ führen, nämlich dann, wenn der betrachtete intermediäre Zustand polarisiert ist. Diese Polarisation impliziert ungleiche Besetzung der $+M$ und $-M$ Zustände, was einen eindeutigen Drehsinn der Kerne und damit der Winkelkorrelation verursacht. Wie in Formel (3.15) angegeben, erhält man zusätzlich einen von $(\omega_0 \tau)$ linear abhängenden Term. Um einen möglichst grossen Effekt zu erzielen, muss deshalb die Polarisation p gross sein, was bedeutet, dass die schweren Ionen nach

dem Coulombanregungsprozess unter einem möglichst kleinen Streuwinkel ϑ_p registriert werden müssen. Die Wahl fiel auf einen experimentell als vernünftig ermittelten Winkel $\vartheta_p = 110°$, unter dem die Stossrate noch genügend gross war. Es muss aber in Erinnerung gerufen werden, dass die Korrelationskoeffizienten nun sehr empfindlich vom Streuwinkel der ^{16}O abhängen und die Integration über die Detektorfläche mit grossen Fehlern behaftet ist. Um eindeutig das Vorzeichen von $\omega_0\tau$ zu bestimmen, ist es deshalb unerlässlich, eine experimentelle Anordnung zu wählen, dergestalt, dass eine Vorzeichenänderung sich in einer Asymmetrie (vgl. Fig. 7) äussert und nicht nur in einer Attenuation, die ja auch durch den Betrag des Wechselwirkungsparameters bestimmt ist.

Die durchgeführten Experimente haben gezeigt, dass es nicht möglich ist, zuverlässig mit einem Teilchendetektor unter $\vartheta_p \neq 180$ gleichzeitig Betrag und Vorzeichen von $\omega_0\tau$ zu ermitteln. Der absolute Wert lässt sich auf einfachere Art unter Ausnützung der Axialsymmetrie mit einem Ringdetektor um die Strahlachse gewinnen. Trotzdem haben die Messungen gezeigt, dass bei Verwendung hoher Zählraten Asymmetrien festgestellt werden können und dadurch eine zuverlässige Vorzeichenzuordnung möglich ist. Die auf W implantiert in Zink- und Gadolinium-Einkristalle beschränkten Untersuchungen haben ergeben, dass in beiden Fällen das Vorzeichen negativ ist. Die ersten Vergleichsmessungen [24] (vgl. Tabelle I) wurden erst kürzlich veröffentlich und stimmen mit diesen Beobachtungen überein.

13. Diskussion der Messresultate

Als Targetmaterial wurde ein natürliches Isotopengemisch genommen. Die Auswertung erstreckte sich über die 2^+-0^+-Übergänge in den Isotopen $^{182,184,186}W$, $^{188,190,192}Os$ und $^{150,152,154}Sm$. Es wurden einige 4^+-2^+-Linien ebenfalls analysiert, doch ist die Statistik zu klein, um aussagekräftige Resultate und Schlüsse daraus zu ziehen. Überlagerungen mehrerer γ-Übergänge gleicher Energie kommen in wenigen Fällen vor. Falls sie von einer höheren Coulombanregung herrühren, ist dieser Beitrag wegen der geringen Intensität vernachlässigbar. Eine Anregung des Backingmaterials kann ausgeschlossen werden, falls das Tielchenspektrum eine Trennung der Ionen, die entweder an Targetkernen oder im Kristall rückgestreut werden, erlaubt. Die systematische Abweichung der Resultate von ^{182}W von denen der beiden andern Isotope könnte auf eine Störung durch die Beimischung von ^{183}W hinweisen.

Zu der primären Auswertung der Koinzidenzspektren (Fig. 10) ist zu sagen, dass die Auflösung der γ-Linien durch die GeLi-Detektoren sehr gut ist und dass in allen Fällen die Subtraktion eines kleinen linearen Untergrundes genügte. Die in den Peaks aufsummierten Koinzidenzereignisse wurden bezüglich der Zahl der rückgestreuten Ionen im Ringdetektor normiert.

Die quadrupolgestörte Winkelkorrelation, wie sie in Gleichung (3.5) angegeben ist, ist eine Funktion von sechs Parametern, nämlich den vier Korrelationskoeffizienten $A_{k_1k_2}^{q_1q_2}$, dem Wechselwirkungsparameter $\omega_0\tau$ und der Norm N. Es erweist sich aber nicht als sinnvoll, in jeder Messung Fits zu 6 Parametern durchzuführen. Vielmehr ist es angebracht, in einfachen Experimenten, meistens mit der Kristallachse $\hat{c}$ parallel und senkrecht zur Strahlachse, zu prüfen, ob die berechneten und für die Raumwinkel korrigierten Korrelationskoeffizienten in vernünftiger Art und Weise mit den experimentell ermittelten übereinstimmen. Von diesem Punkt an genügt es meistens, die Norm, den Parameter $\omega_0\tau$ und einen konstanten Untergrund anzupassen. Dies ist gerecht-

fertigt, da bei Verwendung eines Ringdetektors, die Korrelationskoeffizienten nicht sehr stark von der Geometrie abhängen.

In einigen Winkelkorrelationen gewinnt man eine bessere Anpassung, wenn man bezüglich bestimmter Winkel, unter denen die Intensität laut Theorie unabhängig von der Quadrupolwechselwirkung ist, und die man mit höherer Statistik misst, normiert.

Wie bereits in Kapitel 3.4 betont wurde, steckt die ganze Information über die Störung der Orientierung des Kernzustandes in den Attenuationskoeffizienten $G_{k_1k_2}^{q_1q_2}(t)$. Was uns aber heute noch fehlt, ist die Möglichkeit, die Kristallfelder, die die implantierten Kerne vortreffen, genau mathematisch zu formulieren, wenn neben dem statischen axialsymmetrischen EFG noch andere Effekte eine Rolle spielen. Unter den möglichen störenden Begleiterscheinungen sind folgende zu betrachten:

1) mehrere axialsymmetrische EFG
2) räumliche Verteilung des EFG
3) Asymmetrie des EFG
4) polykristalline Wechselwirkung
5) zeitabhängige EFG
6) zeitabhängige magnetische Felder

In verschiedene Richtungen zeigende EFG könnten auf die Kerne wirken, falls sie an verschiedenen Gitterplätzen zum Stehen kämen. Aus der schönen Symmetrie der gefundenen Winkelkorrelationen kann diese Hypothese verworfen werden. Eine räumliche Verteilung der EFG innerhalb eines begrenzten Kegels ist jedoch denkbar (z.B. durch die Annahme einer statistischen Verteilung von Leerstellen an einem Platz eines nächsten Nachbaratomes) und würde eine Attenuation, wie sie z.T. beobachtet wurde, erklären. Die Abschwächung kann aber auch durch eine polykristalline Wechselwirkung eines Teiles der implantierten Kerne oder durch eine etwas unkorrekte Orientierung der Kristallachse verursacht sein. Wenn eine Verschraubung der Kristallstruktur bekannt ist, wie im Falle von Tellur, können die Attentuationskoeffizienten nach Gleichung (3.10) explizite berechnet werden, indem eine numerische Diagonalisierung des Hamiltonoperators der Wechselwirkung durchgeführt wird. Fluktuierende EFG werden erwartet, falls Fehlstellen in der Nähe des Kernes ihren Ort ändern, doch haben Messungen gezeigt, dass solche Effekte viel grössere Zeitkonstanten haben.

Von all den oben erwähnten Effekten, die einer statischen Quadrupolwechselwirkung in einem Einkristall überlagert sein könnten, bleibt die zeitabhängige magnetische Wechselwirkung als einzige realistische Möglichkeit übrig. Sie kann am besten eliminiert werden, indem bei festen Detektorenpositionen in Funktion der Kristallorientierung gemessen wird. Sie ergibt dann einen konstanten Untergrund, der zudem bei der Messung unter verschiedenen Winkeln ungefähr bestimmt werden kann.

Die Auswertungen, welche zu den Resultaten in Tabelle II geführt haben, haben gezeigt, dass die meisten Messdaten ohne Mühe mit Berücksichtigung eines kleinen Untergrundes vereinbar sind mit der Annahme eines einzigen statischen symmetrischen EFG in den Kristallen Cd, Zn und Gd.

Bleibt noch zu bemerken, dass im Falle des Isotopes ^{150}Sm kein von Null verschiedener Parameter $\omega_0\tau$ extrahiert werden konnte, was bei einer fast 100-fach kleineren Lebensdauer auch nicht zu erwarten ist. Die Messresultate für Os in Te und Cd sind mit einiger Vorsicht zu betrachten, stützen sie sich doch ausschliesslich auf Messungen mit starker polykristalliner Beimischung, weil mit Os keine dünnen Folien hergestellt werden konnten.

BERECHNUNGEN

14. Verhältnisse von Quadrupolmomenten

Da eine zuverlässige Berechnung der kristallinen Umgebung des implantierten Kernes nicht möglich ist, scheint eine direkte Deduktion des absoluten Wertes des Quadrupolmomentes nicht möglich. Aus der naheliegenden Annahme, dass alle verschiedenen Isotope eines Elementes den gleichen EFG antreffen, können, wie aus Gleichung (2.4) ersichtlich ist, aus den in Tabelle III wiedergegebenen Werte der Quadrupolfrequenzen ω_0, Verhältnisse der Quadrupolmomente Q_2 der ersten angeregten 2^+-Zustände berechnet werden. Tabelle IV fasst die Resultate zusammen und erlaubt einen Vergleich mit den besten heute bekannten Daten.

Tabelle IV
Verhältnisse von Quadrupolmomenten

Isotope	Methode	Referenz
$Q(^{182}W):Q(^{184}W):Q(^{186}W) =$		
1 : 0,946 : 0,902	Rotationsmodell	
1 : 0,947 : 0,862	Kumar/Baranger	[41]
1 : 0,965 ± 0,008 : 0,906 ± 0,018	Mössbauer-Effekt	[38]
1 : — : 1,16 ± 0,01	Mössbauer-Effekt	[40]
1 : 0,83 ± 0,09 : 0,90 ± 0,09	IMPAC	diese Arbeit
$Q(^{152}Sm):Q(^{154}Sm) =$		
1 : 0,859	Rotationsmodell	
1 : 0,81 ± 0,13	Reorientierung	[43]
1 : 0,86 ± 0,11	IMPAC	diese Arbeit
$Q(^{188}Os):Q(^{190}Os):Q(^{192}Os) =$		
1 : 0,909 : 0,838	Rotationsmodell	
1 : 0,768 : 0,309	Kumar/Baranger	[41]
1 : 1,11 + 0,25 : 1,14 ± 0,25	IMPAC	[39]
1 : 0,72 ± 0,28 : 0,38 ± 0,22	Reorientierung	[44]
1 : 1,08 ± 0,10 : 0,96 ± 0,14	IMPAC	diese Arbeit

Man sieht, dass die mit IMPAC-Experimenten in Einkristallen gewonnenen Quotiente mit einem Fehler von 10–12% behaftet sind, der durch einen grösseren Aufwand nur geringfügig gesenkt werden könnte. Die bekannten Mössbauer-Daten sind in diesem Fall wesentlich präziser. Ein wichtiges Ziel ist auch ein Vergleich mit Resultaten aus Reorientierungsmessungen, die mit einer grossen Unsicherheit behaftet sind. Die Übereinstimmung früherer Daten mit den vorliegenden dieser Arbeit ist im Falle von W und Sm gut, bei Os müsste man die Resultate von Ref. [39] unterstützen, die ebenfalls auf IMPAC-Messungen beruhen.

15. Berechnung elektrischer Feldgradienten

Die zweite mögliche Zielsetzung, die man solchen Messungen gestörter Winkelkorrelationen zu Grunde legen kann, ist festkörperphysikalischer Art und zielt auf die Abklärung der Herkunft, der Zusammensetzung und der absoluten Stärke der EFG in Kristallen. Indem man mit relativ genau ermittelten Quadrupolmomenten angeregter Zustände Experimente mit Hyperfeinwechselwirkungen durchführt, kann man wichtige Einblicke in die kristallinen Felder gewinnen, die man mit keiner andern Methode in dieser Art erhalten könnte.

In diesem Sinne soll auch die vorliegende Arbeit aufgefasst werden. Mit Hilfe der bekannten Werte der Kernmomente der Isotope von W und Sm oder unter Zuhilfenahme von experimentell ermittelten Übergangswahrscheinlichkeiten $B(E2)$ und dem Rotationsmodell soll eine Vertiefung der Kenntnisse über die EFG in den vier gewählten hexagonalen Einkristallen erreicht werden. Natürlich soll bei den nachfolgenden Betrachtungen nicht vergessen werden, dass die relativen Fehler auf den angenommenen Quadrupolmomenten direkt übertragen werden.

Ausgehend von den ω_0-Werten der Tabelle III kann nun versucht werden, mehr über Herkunft und die Zusammensetzung des EFG zu erfahren. In Tabelle V sind die bekannten Quadrupolmomente angegeben, mit denen aus Gleichung (2.4) V_{zz} resp. das in der Kristallographie üblichere $q_{zz}(V_{zz} = eq_{zz})$ berechnet wurde.

Tabelle V

Isotop	$B(E2)$ $(e^2 b^2)$	Q_2 (barn)	Q_0 (barn)	Referenz
^{182}W	4,30 ± 0,08		6,40 ± 0,03	[42], [2]
^{184}W	3,84 ± 0,07		6,09 ± 0,03	[42], [2]
^{186}W	3,50 ± 0,06		5,90 ± 0,06	[42], [2]
^{150}Sm	1,32 ± 0,06	−1,26 ± 0,20	3,67 ± 0,07	[37], [43], [2]
^{152}Sm	3,40 ± 0,12	−1,73 ± 0,20	5,93 ± 0,03	[37], [43], [2]
^{154}Sm	4,61 ± 0,20	−2,14 ± 0,10	6,65 ± 0,07	[37], [43], [2]
^{188}Os	2,75 ± 0,15	−1,32 ± 0,43	5,20 ± 0,05	[37], [44], [2]
^{190}Os	2,55 ± 0,25	−0,95 ± 0,19	4,96 ± 0,09	[37], [44], [2]
^{192}Os	2,15 ± 0,20	−0,50 ± 0,20	4,73 ± 0,12	[37], [44], [2]

Die effektiven EFG, die auf die implantierten Verunreinigungen in den hexagonalen Kristallen Te, Cd, Zn und Gd wirken, sind in Tabelle VI zusammengestellt.

Wie in Kapitel 2.2 angegeben wurde, nimmt man heute an, dass der Tensor des elektrischen Feldgradienten in einem Metall aus verschiedenen Beiträgen zusammengesetzt wird. Ein erster Anteil V_{zz}^{Gitter} wird dabei von den positive geladenen Ionenrümpfen der Gitterstruktur verursacht, ein zweiter, nicht zu vernachlässigender Term kommt von der nicht sphärischen Verteilung der Elektronen.

Tabelle VI
Elektrische Feldgradienten V_{zz} in 10^{17} V/cm^2

	Implantiertes Element		
Einkristall	W	Sm	Os
Zn	7,65 ± 0,45	1,17 ± 0,15	14,44 ± 0,85
Te	6,46 ± 0,40	1,75 ± 0,40	6,50 ± 0,45
Cd	8,64 ± 0,70	1,20 ± 0,25	6,27 ± 0,52
Gd	6,84 ± 0,32	2,11 ± 0,18	12,88 ± 0,95

Um zu sehen, bis zu welchem Grad der aus dem Experiment erhaltene EFG mit dem ionischen Beitrag der hexagonalen Kristallstruktur erklärt werden kann, wurden die Berechnungen nach Gleichung (2.15) für Cd, Zn und Gd durchgeführt. Im Falle von Te, das eine Verschraubung der Struktur aufweist, gilt diese Formel nicht mehr. Tabelle VII zeigt die Resultate zusammen mit den benützten Kristallparametern.

Tabelle VII

Kristall	c (A)	a (A)	c/a	η	Z	V_{zz}^{Gitter} (10^{16} V/cm^2)	Ref.
Cd	5,618	2,979	1,886		2+	−1,194	[45], [46]
Zn	4,947	2,665	1,856		2+	−1,469	[45], [46]
Te	5,929	4,457	1,330	0,654	6+		[5], [46]
Gd	5,777	3,632	1,591		3+	+0,172	[47]

Die in der letzten Kolonne angegebenen Werte von V_{zz}^{Gitter} müssen gemäss Gleichung (2.14) mit dem Korrekturfaktor $(1-\gamma_\infty)$ multipliziert werden, um dem bedeutenden antishielding-Effekt Rechnung zu tragen. Diese Faktoren sind nach Hartree-Fock-Berechnungen [48] für W, Os und Sm ohne bekannte Unsicherheit 55,7, 47,5 und 80 [49].

Definiert man nun:

$$V_{zz}^{\text{Diff.}} = V_{zz}^{\text{Exp.}} - V_{zz}^{\text{Gitter}}(1-\gamma_\infty)$$

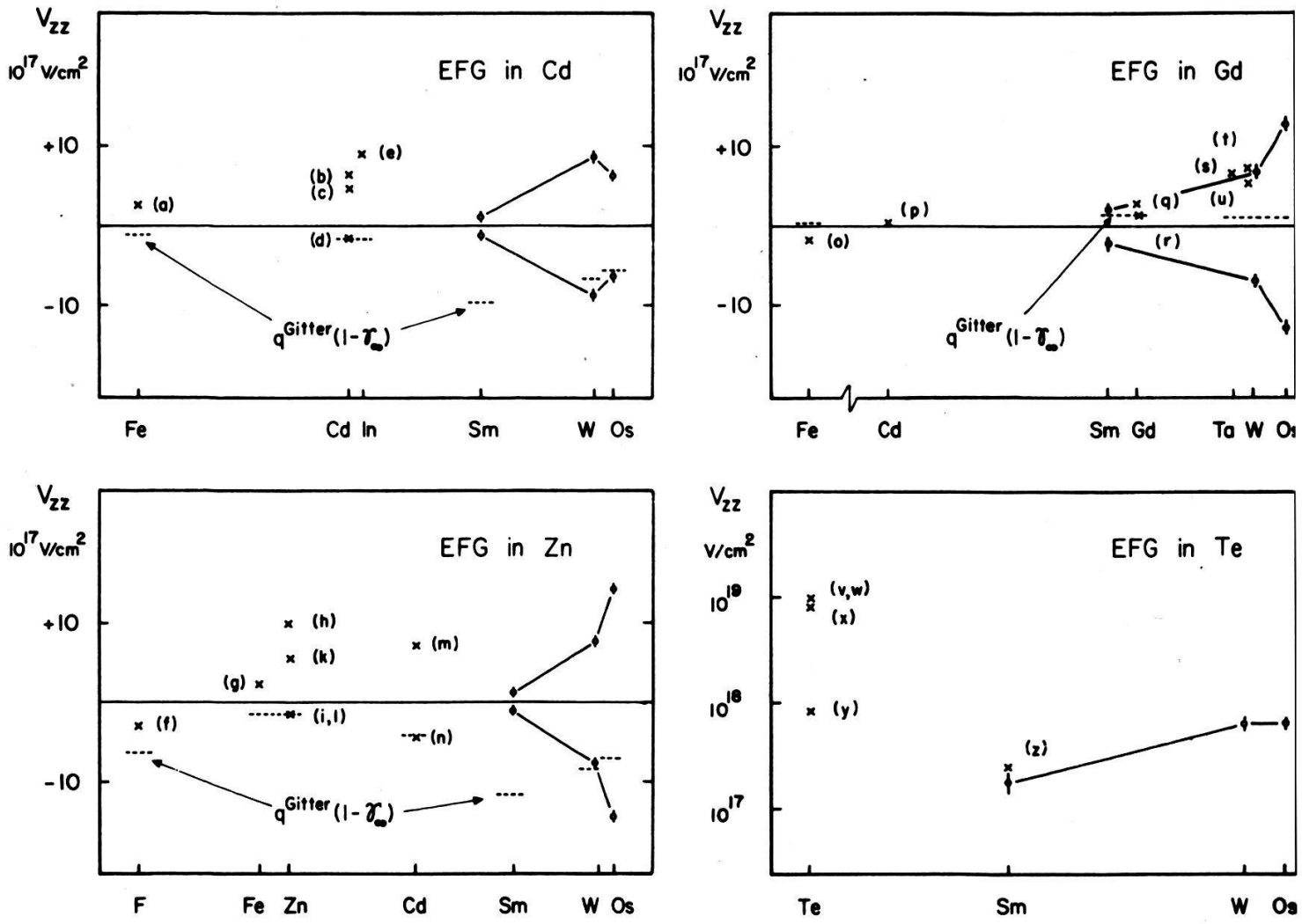
so enthält der Differenztensor $V_{zz}^{\text{Diff.}}$ im Prinzip alle Beiträge der Elektronen, die hier nicht weiter zerlegt werden sollen. Tabelle VIII zeigt diese restlichen EFG für die drei untersuchten, implantierten Elemente. Eine damit ungelöste Frage bleibt die des Vorzeichens der einzelnen Beiträge zum EFG. Da man aus Experimenten, durchgeführt mit einem Ringdetektor, nur den Betrag von $V_{zz}^{\text{Exp.}}$ extrahieren kann, darf in jenen Fällen das Vorzeichen geändert werden, wodurch sich zwei Alternativen ergeben. In den beiden Fällen, wo das Vorzeichen bestimmt wurde, ist der nicht zutreffende Wert eingeklammert.

Tabelle VIII
$V_{zz}^{\text{Diff.}}$ in 10^{17} V/cm^2

Kristall	W	Os	Sm
Zn	+15,84 ± 0,45 ↑↓	+21,43 ± 0,85 ↑↓	+12,92 ± 0,15 ↑↓
	(+0,54) ± 0,45 ↑↓	−7,45 ± 0,85 ↑↑	+10,58 ± 0,15 ↑↓
Cd	+15,29 ± 0,70 ↑↓	+11,95 ± 0,52 ↑↓	+10,75 ± 0,25 ↑↓
	−1,99 ± 0,70 ↑↑	−0,59 ± 0,52 ↑↑	+8,35 ± 0,25 ↑↓
Gd	+5,88 ± 0,32 ↑↑	+12,06 ± 0,95 ↑↑	−3,49 ± 0,18 ↑↓
	(−7,80) ± 0,32 ↑↓	−13,70 ± 0,95 ↑↓	+0,73 ± 0,18 ↑↑

(V_{zz}^{Gitter} und $V_{zz}^{\text{Elek.}}$ gleichgerichtet ↑↑, entgegengesetzt ↑↓.)

Die Vermutung, dass der ionische und der elektronische Anteil in einigen Festkörpern entgegengesetztes Vorzeichen besitzen könnten, wurde schon öfters geäussert und durch einige Berechnungen und Messungen bestätigt. Die Betrachtung der in Tabelle VIII wiedergegebenen Differenzen der EFG erlaubt, folgende allgemeine Feststellung zu machen: Unabhängig vom Vorzeichen des experimentell ermittelten EFG, scheint der ionische Beitrag allein nicht verantwortlich zu sein und der Effekt, hervorgerufen durch die Elektronenkonfiguration im Raum ist sehr wichtig. Nur in wenigen Fällen, so z.B. für W in Zn findet man einen kleinen $V_{zz}^{\text{Diff.}}$, was die frühere Behauptung stützen würde, dass in Metallen wie Cd und Zn, wo die Elektronen sehr frei sind und die Einheitszelle sehr langgestreckt ist, der ionische Anteil zum totalen EFG dominant sei und der elektronische nur eine kleine Korrektur bewirke. Gerade in diesem Fall ist das Vorzeichen bekannt und diese Interpretation muss verworfen



Figur 24
Elektrische Feldgradienten: (a) Ref. [52], (b) Ref. [20], [26], [28] mit $Q = 0{,}77$, (c) und (d) Ref. [7] V(Gitter) und V_{zz}(Gitter + Elektronen), (e) Ref. [25] mit $Q = 0{,}64$, (f) Ref. [53], (g) Ref. [52], (h) und (i) Ref. [22] V_{zz}(exp.) mit $Q = 0{,}20$ und V_{zz}(Gitter), (k) und (l) Ref. [55] V_{zz}(Gitter) und V_{zz}(Gitter und Elektronen), (m) und (n) Ref. [56] mit $Q = 0{,}77$ und V_{zz}(Gitter), (o) Ref. [58], (p) Ref (57) mit $Q = 0{,}77$, (q) Ref. [47], (r) Ref. [54], (s) Ref. [57], (t) Ref. [24], (u) Ref. [23], (v) Ref. [50], (w) Ref. [51], (x) und (y) Ref. [53], (z) Ref. [32].

werden. Auch Sm implantiert in Cd und Zn zeigt sehr deutlich, die wichtige Rolle von $V_{zz}^{\text{Elek.}}$. Im Falle von Gd ergibt die Berechnung nach Das und Pomerantz einen winzigen EFG der Ionenrümpfe des Gitters und man muss annehmen, dass die Leitungselektronen der $4f$-Schale fast voll verantwortlich sind für die starke gemessene Quadrupolwechselwirkung. Figur 24 gibt für die vier untersuchten Einkristalle eine Übersicht über die bis jetzt bekannten und neu bestimmten Angaben über die EFG. Die eingezeichneten gestrichelten Linien geben den ionischen Anteil korrigiert mit den entsprechenden Sternheimerfaktoren wieder.

16. Schlusswort

Die Theorie der gestörten Winkelkorrelationen sagt voraus, dass eine Wechselwirkung zwischen dem Quadrupolmoment eines deformierten Kernes und einem hohen elektrischen Feldgradienten zu einer charakteristischen Störung der Korrelationsfunktion führt. Die Messungen haben gezeigt, dass diese Störung messbar ist und

eindeutig auf die statische Quadrupolwechselwirkung zurückzuführen ist. Die durchgeführten Experimente mit Implantation in hexagonale Einkristalle haben bestätigt, dass die Annahme eines einzigen axialsymmetrischen EFG gerechtfertigt ist.

Die systematischen Fehler, die durch das Experimentieren mit Einkristallen und der Implantation entstehen, mögen zwar eine direkte Konkurrenz mit NQR- und Mössbauer-Messungen verhindern, jedoch ist der Anwendungsbereich der IMPAC-Methode viel weiter gespannt. Diese Arbeit hat überdies gezeigt, dass Verhältnisse von Quadrupolmomenten auf diese Art und Weise genauer als mit Messungen basierend auf dem Reorientierungseffekt, bestimmt werden könnten. Die Kenntnisse über Kerndeformationen angeregter kurzlebiger Kernzustände sind heute noch so dürftig, dass jede Erweiterung und Möglichkeit zu Vergleichen nur begrüsst werden kann.

Die durchgeführten Experimente haben auch erstmals gezeigt, dass interessante Untersuchungen über die Herkunft und die Zusammensetzung der EFG in Metallen zeitintegrierten Messungen angestellt werden können. Die Resultate lassen darauf schliessen, dass Befürchtungen, wonach die Kristallstruktur stark strahlengeschädigt sei, ungerechtfertigt sind. Eine Vertiefung der Kenntnisse ist auch speziell mit Hilfe differentieller Messungen oder unter Zuhilfenahme polarisierter Kernprodukte möglich. Im Gebiete der zeitintegrierten Messungen wäre speziell die Variation äusserer Einflüsse wie Temperature und Druck interessant. Speziell auf dem Gebiet der Hyperfeinfeldern in Festkörpern stellt die IMPAC-Methode ein wirkungsvolles Instrument dar und es steht ihr noch ein kaum erschlossenes Applikationsfeld offen.

Referenzen

[1] A. Bohr und B. R. Mottelson, *Nuclear Structure*, Vol. 1 (New York 1969) und B. R. Mottelson in *Proceedings of the International School of Physics 'Enrico Fermi'* (1962).
[2] *Nuclear Data Tables A7*, p. 495 (1970).
[3] F. W. De Wette, Phys. Rev. *123*, 1, 103 (1961).
[4] T. P. Das und M. Pomerantz, Phys. Rev. *A123*, 2070 (1961).
[5] P. Boolchand, T. Henneberger und J. Oberschmidt, Phys. Rev. Lett. *30*, 26, 1292 (1973).
[6] N. C. Mohapatra, C. M. Singal, T. P. Das und P. Jena, Phys. Rev. Lett. *29*, 8, 456 (1972).
[7] N. C. Mohapatra, C. M. Singal und T. P. Das, Phys. Rev. Lett. *31*, 8, 530 (1973).
[8] K. Alder, H. Albers-Schönberg, E. Heer und T. B. Novey, Helv. Phys. Acta *26*, 761 (1953).
[9] R. M. Steffen und K. Alder, *The Electromagnetic Interaction in Nuclear Physics*, edited by W. D. Hamilton.
[10] H. Frauenfelder und R. M. Steffen, *α-, β- und γ-Spectroscopy*, edited by K. Siegbahn, p. 997.
[11] C. T. Alonso und L. Grodzins, Phys. Rev. *C5*, 728 (1972).
[12] L. Grodzins, *International Course on Nuclear Theory, Trieste, Italien* (1971).
[13] A. Winther und J. DeBoer, *Coulomb Excitation*, edited by K. Alder und A. Winther (1966), p. 303.
[14] L. Grodzins und O. Klepper, Phys. Rev. *C3*, 1019 (1971).
[15] C. Günther, B. Skaali, R. Bauer und B. Herskind, Nucl. Phys. *A164*, 321 (1971).
[16] M. Beckert und H. Klemm, *Handbuch der metallographischen Aetzverfahren* (Leipzig 1962).
[17] M. Behar und R. M. Steffen, Phys. Rev. Lett. *29*, 2, 116 (1972).
[18] H. Haas, W. Leitz, H.-E. Mahnke, W. Semmler, R. Sielemann und Th. Wichert, Phys. Rev. Lett. *30*, 14, 656 (1973).
[19] R. S. Raghavan, P. Raghavan und J. M. Friedt, Phys. Rev. Lett. *30*, 1, 10 (1973).
[20] J. M. Donald, P. M. Lesser und D. B. Fossan, Phys. Rev. Lett. *28*, 16, 1057 (1972).
[21] T. Butz, Phys. Lett. *46A*, 3, 231 (1973).
[22] H. Bertschat, E. Recknagel und B. Spellmeyer, Phys. Rev. Lett. *32*, 1, 18 (1974).
[23] E. N. Kaufmann, D. E. Murnick, C. T. Alonso und L. Grodzins, *Hyperfine Interactions in Excited Nuclei*, edited by G. Goldring und R. Kalish (1971), p. 1033.
[24] O. Klepper, E. N. Kaufmann und D. E. Murnick, Phys. Rev. *C7*, 1691 (1973).
[25] R. S. Raghavan, P. Raghavan und E. N. Kaufmann, Phys. Rev. Lett. *31*, 2, 111 (1973).

[26] J. Bleck, R. Butt, H. Haas, W. Ribbe und W. Leitz, Phys. Rev. Lett. *29*, 20, 1371 (1972).
[27] R. S. Raghavan und P. Raghavan, Phys. Rev. Lett. *28*, 1, 54 (1972).
[28] P. Raghavan, R. S. Raghavan und W. B. Holzapfel, Phys. Rev. Lett. *28*, 14, 903 (1972).
[29] R. S. Raghavan und P. Raghavan, Phys. Lett. *36A*, 4, 313 (1971).
[30] R. M. Lieder, N. Buttler, K. Killig, K. Beck und E. Bodenstedt, *Hyperfine Interactions in Excited Nuclei*, edited by G. Goldring und R. Kalish (1971), p. 449.
[31] L. Ph. Roesch, R. Kulessa, F. Horber, H. P. Seiler und P. Marmier, Phys. Rev. *B9*, 4638 (1974).
[32] L. Grodzins, *Nuclear Reactions Induced by Heavy Ions* (1970), p. 367, und MIT-Bericht.
[33] R. Kulessa und L. Ph. Roesch, *Interactions of Nuclear Moments with Extranuclear Fields*, edited by PWN Warschau (1974).
[34] R. Kulessa, L. Ph. Roesch, F. Horber, H. P. Seiler und P. Marmier, Helv. Phys. Acta *46*, 52 (1973) und Jahresbericht ETHZ.
[35] P. Raghavan und R. S. Raghavan, Phys. Rev. Lett. *27*, 11, 724 (1971).
[36] J. C. Waddington, K. A. Hagemann, S. Ogaza, D. Kiss, B. Herskind und B. I. Deutch, *Nuclear Reactions Induced by Heavy Ions* (1970), p. 438.
[37] *Nuclear Data Tables A1*, *A4*, *B1* und *B9*.
[38] L. W. Oberley, N. Hershkowitz, S. A. Wender und A. B. Carpenter, Phys. Rev. *C3*, 4, 1585 (1971).
[39] *Nuclear Data Tables B9*.
[40] B. Persson, H. Blumberg und D. Agresti, Phys. Lett. *24B*, 10, 522 (1967).
[41] K. Kumar und M. Baranger, Nucl. Phys. *A122*, 273 (1968).
[42] R. G. Stockstad und B. Persson, Phys. Rev. *170*, 1072 (1968)
[43] *Nuclear Data Tables A11*, p. 281.
[44] S. A. Lane und J. X. Saladin, Phys. Rev. *C6*, 2, 613 (1972).
[45] F. S. Galasso, *Structure and Properties of Inorganic Solids* (1970).
[46] E. Bodenstedt, U. Ortabasi und W. H. Ellis, Phys. Rev. *B6*, 2909 (1972).
[47] Y. Seiwa, T. Tsuda, A. Hirai und C. W. Searle, Phys. Lett. *43A*, 1, 23 (1973).
[48] F. D. Feiock und W. R. Johnson, Phys. Rev. *187*, 39 (1969).
[49] J. Pelzl, S. Hüfner und S. Scheller, Z. für Physik *231*, 377 (1970).
[50] P. Boolchand, B. L. Robinson und S. Jha, Phys. Rev. *B2*, 9, 3463 (1970).
[51] C. E. Violet, R. Booth und F. Wooten, Phys. Lett. *5*, 4, 230 (1963).
[52] S. M. Quaim, J. Phys. C, Ser. 2, *2*, 1434 (1969).
[53] P. Boolchand, T. Henneberger und J. Oberschmidt, Phys. Rev. Lett. *30*, 1292 (1973).
[54] J. Pelzl, Z. für Physik *251*, 13 (1972).
[55] T. P. Das, private Kommunikation.
[56] P. Raghavan, Bull. Am. Phys. Soc. *18*, 134 (1973).
[57] M. Forker, J. B. Fechner, H. Havenkamp und G. Schäfer, *Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions and Decay* (Uppsala (1974).
[58] J. A. Sawicki, *Report von Institute of Nuclear Physics* (Krakau 1972).