Zeitschrift:	Helvetica Physica Acta
Band:	35 (1962)
Heft:	VI
Artikel:	Kernresonanz im gasförmigen Xenon
Autor:	Brinkmann, D. / Brun, E. / Staub, H.H.
DOI:	https://doi.org/10.5169/seals-113285

### Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. 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. <u>Siehe Rechtliche Hinweise.</u>

## **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. <u>Voir Informations légales.</u>

#### 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. <u>See Legal notice.</u>

**Download PDF:** 02.04.2025

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

# Kernresonanz im gasförmigen Xenon

## von D. Brinkmann, E. Brun und H. H. Staub

(Physik-Institut der Universität Zürich)

### (19. III. 62)

Summary: The relaxation times of  $Xe^{129}$  and  $Xe^{131}$  in natural Xenon gas at high density were measured at room temperature. In both cases the relaxation time was found to be inversely proportional to the density. The values for  $Xe^{131}$  are in very good agreement with the theory of Staub. The relaxation times are considerably longer than those of earlier measurements but still much shorter than those caused by pure dipol-dipol-interaction. The shift of the resonance frequency of  $Xe^{129}$  with density discovered by STREEVER and CARR was found to be proportional to the external field.

Die beiden Xenonisotope Xe<sup>129</sup> und Xe<sup>131</sup> waren schon mehrmals Gegenstand von Kernresonanzuntersuchungen<sup>1</sup>)<sup>2</sup>)<sup>3</sup>)<sup>4</sup>), da bei Gasen am ehesten relativ einfache Relaxationsmechanismen erwartet werden können. Die charakteristischen Daten der beiden Isotope sind:

	Xe <sup>129</sup>	Xe <sup>131</sup>
Häufigkeit:	26,24%	21,24%
Spin:	1/2	3/2
Magnetisches Moment:	- 0,77255	0,68680
	Kernmagnetone	Kernmagnetone
Quadrupolmoment:		$-$ 0,12 $\cdot$ 10 <sup>-24</sup> cm <sup>2</sup>

Bei den hier zu beschreibenden Messungen wurden Xenonproben benutzt, die sich durch sehr kleinen Sauerstoffgehalt auszeichneten. Nach Angaben der Lieferfirma (Linde, München) soll das Gas, das unter Normaldruck stand, 99,9% Xenon und weniger als 0,001% Sauerstoff enthalten. Der Rest besteht aus Stickstoff und Krypton. Bei 0°C beträgt also die Sauerstoffkonzentration weniger als 2,7  $\cdot$  10<sup>14</sup> O<sub>2</sub>-Moleküle/cm<sup>3</sup>. Dieses Gas wurde in Pyrexampullen von 3 cm<sup>3</sup> Gesamtvolumen abgefüllt, die auf ca. 10<sup>-3</sup> Torr evakuiert und auf etwa – 130°C gekühlt wurden. (Xenon wird bei – 107,1°C flüssig und gefriert bei – 111,5°C.) Da während des Abschmelzens der Proben weiterhin gekühlt und evakuiert wurde, muss der Sauerstoffgehalt der fertigen Proben bedeutend geringer als ca. 10<sup>16</sup> O<sub>2</sub>-Moleküle/cm<sup>3</sup> sein. Diese Verunreinigung hätte sich bei der Probe mit der höchsten Xenondichte (293 Amagat, entsprechend etwa 30 Atm. Druck bei 0°C) ergeben, wenn beim Abschmelzen nicht evakuiert worden wäre.

Mit einem Kerninduktionsspektrometer vom Blochschen Typus wurden die Relaxationszeiten von Xe<sup>129</sup> und Xe<sup>131</sup> bei Zimmertemperatur als Funktion der Gesamtgasdichte gemessen. Im Falle des Xe<sup>131</sup> wurde mittels der Seitenbandtechnik<sup>3</sup>)<sup>5</sup>) die Sättigung der Absorptionssignale beobachtet, da die Relaxationszeiten von der Grössenordnung  $10^{-1}$  sec sind. Für das Maximum S dieses Signales erhält man für den Fall, dass die wahre Linienbreite klein gegenüber der Inhomogenität ist (die experimentell in der gewünschten Grösse hergestellt werden konnte),



Natürliches Xenon. Dichte 0,995 g/cm<sup>3</sup> (170 Amagat)

a) (oben) Die Grösse der Xe<sup>131</sup>-Signale als Funktion von  $\gamma H_1 J_1$ . Die ausgezogene Kurve stellt die zu  $S_0 \gamma H_1 J_1 T_1$ 

$$\frac{(\gamma - 1)(1 - 1)}{\sqrt{1 + (\gamma H_1 J_1 T_1)^2}}$$

proportionale Signalgrösse dar, mit  $T_1 = 137$  m sec und  $S_0 = 7,1$  willkürliche Einheiten.

b) (unten) Die Grösse der Xe<sup>129</sup>-Signale als Funktion der Wartezeit t. Die ausgezogene Kurve stellt die zu  $M_0$   $(1 - e^{-t/T_1})$  proportionale Signalgrösse dar, mit  $T_1 = 1171$  sec und  $M_0 = 7,5$  willkürliche Einheiten.

 $\gamma$  ist das gyromagnetische Verhältnis,  $H_1$  die Amplitude des rotierenden Hochfrequenzfeldes und  $J_1$  die Besselfunktion 1. Ordnung des Argumentes  $\gamma H_m/\Omega$ , wo  $H_m$  bzw.  $\Omega$  Amplitude und Kreisfrequenz des Modulationsfeldes darstellen. Die gesuchte Relaxationszeit  $T_1$  findet man, indem man S als Funktion von  $x/T_1 = \gamma H_1 J_1$  misst und den experimentellen Punkten die Kurve  $x/\sqrt{1+x^2}$  anpasst\*). Figur 1a zeigt einige der aufgenommenen Signale mit der angepassten Kurve.

Im Gegensatz zu früheren Messungen<sup>1</sup>)<sup>2</sup>)<sup>3</sup>) wurde eine ausgezeichnete Übereinstimmung zwischen den experimentellen und den von STAUB<sup>2</sup>) theoretisch berechneten Relaxationszeiten gefunden, wie aus Figur 2 ersichtlich ist. Misst man die Dichte  $\varrho$  in Amagat, also in Vielfachen der unter Normalbedingungen herrschenden Dichte (1 Amagat Xenon =  $5,84 \cdot 10^{-3} \text{ g/cm}^3$ ), so lässt sich die Relaxationszeit  $T_1$  durch  $1/T_1 =$  $3,96 \cdot 10^{-2} \cdot \varrho \text{ sec}^{-1}$  darstellen. Die Relaxation des Xe<sup>131</sup>-Spinsystems wird also offensichtlich durch die Wechselwirkung des Kernquadrupol-



Der Kehrwert der Relaxationszeit des Xe<sup>131</sup> als Funktion der Dichte

momentes des Xe<sup>131</sup> mit inhomogenen elektrischen Feldern bewirkt, die durch Deformation der Elektronenhülle beim Zusammenstoss der Xenonatome entstehen.

Im Falle des Xe<sup>129</sup>, dessen Relaxationszeiten wesentlich länger sind, wurde der Aufbau der Magnetisierung M(t) nach vollständiger Sättigung des Spinsystems gemessen. Dieser vollzieht sich nach der Gleichung  $M(t) = M_0(1 - e^{-t/T_1})$ , wo  $M_0$  die Gleichgewichtsmagnetisierung bedeutet

28 H. P. A. 35, 6 (1962)

<sup>\*)</sup> Wir haben die wohlbegründete Annahme gemacht, dass  $T_1 = T_2$ . Siehe z. B. R. K. WANGSNESS und F. BLOCH, Phys. Rev. 89, 728 (1953).

und t die Wartezeit, die nach der Sättigung verstrichen ist. Figur 1 b zeigt einige Signale zu verschiedenen Wartezeiten. Figur 3 gibt die Ergebnisse der verschiedenen Messungen wieder. Auch beim Xe<sup>129</sup> ist  $T_1$  umgekehrt proportional zur Dichte:  $1/T_1 = 6,05 \cdot 10^{-6} \cdot \varrho \ \text{sec}^{-1}$ , was qualitativ auch von H. Y. CARR\*) beobachtet wurde, während ältere Messungen<sup>1</sup>)<sup>3</sup>)<sup>4</sup>) eine stärkere Druckabhängigkeit und kürzere  $T_1$ -Werte ergaben.



Der Kehrwert der Relaxationszeit des Xe<sup>129</sup> als Funktion der Dichte

Auf Grund einer reinen Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen den Xenonkernen wären bei Xe<sup>129</sup> etwa 10<sup>3</sup>mal längere Zeiten zu erwarten. Durch Verunreinigung mit Sauerstoff könnte diese Relaxationszeit verkürzt werden. Nimmt man an, dass die Wechselwirkung in einer reinen Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen dem Xenonkern und dem Sauerstoffmolekül besteht, so ergibt eine einfache Rechnung für die Relaxationszeit  $T_1'$  infolge dieses Prozesses, wenn n' die Zahl der Sauerstoffmoleküle pro cm<sup>3</sup> bedeutet,

$$T_1' = \frac{2.6 \cdot 10^{20}}{n'}$$
 sec.

\*) Persönliche Mitteilung.

Wir haben diese Relation experimentell geprüft, indem Xenonproben mit einem exakt messbaren Sauerstoffgehalt hergestellt wurden. Die an solchen Proben gemessenen Relaxationszeiten zeigen die Proportionalität mit 1/n'. Die absoluten Werte von  $T_1'$  sind um einen Faktor 2,6 kleiner als die berechneten, das heisst  $T_1' = 10^{20}/n'$  sec, was in Anbetracht der vereinfachenden Annahmen verständlich erscheint. In den gereinigten



Die Verschiebung der Xe<sup>129</sup>-Resonanzfrequenz als Funktion der Dichte Proben war n' sicher viel kleiner als  $10^{16}O_2$ -Moleküle/cm<sup>3</sup>. Wäre die kurze Relaxationszeit durch den geringen Restsauerstoffgehalt bedingt, so müsste sie daher wesentlich grösser als  $10^4$  sec sein.

Relaxation durch Stösse an der Wand kommt als Ursache der relativ kurzen Zeiten nicht in Frage, da in jedem Fall der Diffusionskoeffizient mit wachsendem Druck sinkt, die Relaxationszeit also grösser werden müsste.

BLOEMBERGEN\*) äusserte die Vermutung, es könne zwischen Xe<sup>129</sup>- und Xe<sup>131</sup>-Kernen durch Vermittlung der Hüllenelektronen eine indirekte Spin-Spin-Wechselwirkung bestehen. Eine Prüfung dieser Vermutung mit Hilfe der von Abragam<sup>6</sup>) für diesen Prozess angegebenen Beziehun-

\*) Persönliche Mitteilung.

gen ist nicht möglich, da die von ABRAGAM gemachten Voraussetzungen nicht erfüllt sind. Eine experimentelle Entscheidung, ob eine indirekte Wechselwirkung existiert, kann unter Umständen ein Doppelresonanzexperiment bringen, wenn mit einem schwachen Hochfrequenzfeld die Xe<sup>129</sup>-Resonanz beobachtet wird, während man mit einem starken Hochfrequenzfeld die Xe<sup>131</sup>-Resonanz sättigt. Ein solches Experiment wird zur Zeit vorbereitet.

Die von STREEVER und CARR<sup>4</sup>) erstmals beobachtete Verschiebung der Resonanzfrequenz bei Xe<sup>129</sup> mit wachsender Dichte konnte in den vorliegenden Experimenten bestätigt werden. Bei zwei verschiedenen Werten des statischen Feldes ( $H_0 = 5528$  Gauss und  $H_0 = 9525$  Gauss) wurde die Frequenzänderung in Funktion der Dichte relativ zu einer Standardprobe ( $\varrho = 254$  Amagat) gemessen. Figur 4 zeigt, dass die Verschiebung proportional der Dichte und dem statischen Feld ist. Die Werte der Frequenzverschiebung der Standardprobe bei den beiden Werten des statischen Feldes wurden daher so festgesetzt, dass sich die beiden Geraden zum gemeinsamen Nullpunkt extrapolieren lassen. Die Frequenzverschiebung  $\Delta \nu$  lässt sich dann durch

 $\Delta v = c H_0 \rho$  mit  $c \approx 5.5 \cdot 10^{-4} \text{ Hz} (\text{Gauss} \cdot \text{Amagat})^{-1}$ 

ausdrücken. Die von STREEVER und CARR<sup>4</sup>) gefundene Verschiebung von 3,45 Milligauss pro Amagat bei  $H_0 = 8060$  Gauss stimmt innerhalb der Fehler mit dem aus der obigen Beziehung berechneten Wert überein.

Die Resonanzverschiebung bedeutet, dass das am Kernort herrschende lokale Magnetfeld grösser ist in Proben höherer Dichte als in solchen niedrigerer Dichte. Würde diese Verschiebung von Schwankungen des durch die Elektronenhülle erzeugten diamagnetischen Feldes infolge der Atomzusammenstösse herrühren<sup>4</sup>), so ist verständlich, dass diese Verschiebung dem äusseren Feld proportional ist. Der in den Proben noch verbliebene Sauerstoff kann für die Frequenzverschiebung nicht verantwortlich gemacht werden, denn die Proben mit dem bekannten Sauerstoffgehalt (der grösser ist als bei den übrigen Proben!) liefern die gleiche Verschiebung wie die von Sauerstoff gereinigten Proben gleicher Xenondichte.

### Literatur

- E. BRUN, J. OESER, H. H. STAUB und C. G. TELSCHOW, Helv. phys. Acta 27, 174 (1954).
- <sup>2</sup>) H. H. STAUB, Helv. phys. Acta 29, 246 (1956).
- <sup>3</sup>) J. OESER, Dissertation, Zürich (1957).
- 4) R. L. STREEVER und H. Y. CARR, Phys. Rev. 121, 20 (1961).
- <sup>5</sup>) K. HALBACH, Helv. phys. Acta 29, 37 (1956).
- <sup>6</sup>) A. ABRAGAM, The Principles of Nuclear Magnetism, Oxford University Press (1961). Nachtrag: E. R. HUNT und H. Y. CARR fanden neuerdings für Xe<sup>129</sup>  $1/T_1 = 5.7 \cdot 10^{-6} \cdot \varrho$  und  $\Delta H = 4.3 \cdot 10^{-7} \cdot \varrho \cdot H_0$  (bzw.  $\Delta \nu = 5.1 \cdot 10^{-4} \cdot \varrho \cdot H_0$ ). Diese Werte stimmen gut mit unseren Ergebnissen überein. (Bulletin of the American Physical Society, April 23, 1962)