

## NOTIZEN

## Determination of Cosmogenic Production Rates of Be-10 and Be-7 in the Atmosphere from Activity Measurements in Soil Layers

P. MOELLER and K. WAGNER \*

Hahn-Meitner-Institut Berlin, Sektor Kernchemie  
(Z. Naturforsch. 23 a, 1221 [1968]; received 6 July 1968)

The cosmogenic production rates of Be-10 and Be-7 in the atmosphere have been derived from activity measurements of the Be-isotopes in soils. The ratio of the spallation yields was found to be Be-10/Be-7 =  $0.7 \pm 0.3$ .

The ratio  $\alpha$  of the spallation yields of Be-10 and Be-7 produced in the atmosphere by cosmic rays can be derived from activity measurements in soils when we make use of some meteorological data. Earlier determinations of  $\alpha$  are based on spallation tests in target materials<sup>1-4</sup>. LAL and PETERS<sup>5, 6</sup> reported  $\alpha = 0.55$ . Starting with our experimental data on specific Be activities in surface layers<sup>7</sup>, we derived the mean deposition rate,  $D$  [ $\text{cm}^{-2} \text{ year}^{-1}$ ]. From this we obtained the production rates,  $P$  [ $\text{cm}^{-2} \text{ year}^{-1}$ ], in the following way:

(1) The Be-7 activity in soils was found to be  $2.4 \pm 0.4 \text{ dpm} \cdot \text{cm}^{-2}$  (Berlin, geomagnetic altitude  $52^\circ \text{N}$ , 1966). This agrees well with results computed from

Be-7 activity measurements of rain-water samples in 1966<sup>7</sup>. As is well known, the deposited Be-7 is washed out from the troposphere, and its mean residence time there is supposed to be 40 days<sup>6</sup>.

Taking the tropospheric production rate as  $1/3$  of the global rate, and the stratospheric addition of Be-7 to the tropospheric content as<sup>6</sup>  $(10 \pm 10)\%$ , we obtain  $P(\text{Be-7}) = (6.0 \pm 1.6) \cdot 10^6 \text{ atoms Be-7/cm}^2 \text{ year}$ .

(2) From the Be-10 activity found in (12,000  $\pm 2,000$ ) years old limonite (near Hannover, geomagnetic altitude  $52^\circ \text{N}$ ) we calculated the deposition rate as  $D(\text{Be-10}) = (6.3 \pm 1.4) \cdot 10^6 \text{ atoms Be-10/cm}^2 \text{ year}$ . If we assume that cosmogenic Be-10 deposition shows the same global altitude distribution as fall-out products do, the observed value at  $52^\circ \text{N}$  corresponds to  $(1.5 \pm 0.2)^6$  times the mean global production rate. Thus we obtain for the mean global production rate  $P(\text{Be-10}) = (4.2 \pm 1.1) \cdot 10^6 \text{ atoms Be-10/cm}^2 \text{ year}$ .

This is in good agreement with the results of McCORKELL, FIREMAN and LANGWAY<sup>8</sup>, who found  $D(\text{Be-10}) = (1.1 \pm 0.5) \cdot 10^6 \text{ atoms Be-10/cm}^2 \text{ year}$  in Greenland ice. This deposition rate corresponds to a mean global production rate of  $4 \cdot 10^6 \text{ atoms Be-10/cm}^2 \text{ year}$ , the relation of LAL and PETERS<sup>6</sup> being used.

From (1) and (2) follows  $\alpha = 0.7 \pm 0.3$  for the spallation yield ratio of Be-10/Be-7 in the atmosphere by cosmic rays.

\* Present address: Institute of Physical Chemistry, KFA Juelich, West-Germany.

<sup>1</sup> M. O. FULLER, UCRL 2699 [1954].

<sup>2</sup> D. LAL, P. K. MAHOTRA, and B. PETERS, J. Atmosph. Terr. Phys. **12**, 306 [1958].

<sup>3</sup> D. H. KELLOGG, Phys. Rev. **90**, 224 [1953].

<sup>4</sup> M. HONDA and D. LAL, Nucl. Phys. **51**, 363 [1964].

<sup>5</sup> D. LAL and B. PETERS, Cosmic Ray Produced Isotopes and their Application to Problems in Geophysics, in: Progress

in Elementary Particles and Cosmic Ray Physics, Vol. 6, North Holland Publishing Comp., Amsterdam 1962.

<sup>6</sup> D. LAL, Cosmic Ray Produced Radioactivity on the Earth, in: Handbuch der Physik, Vol. XLVI/2, Springer-Verlag, Berlin 1967.

<sup>7</sup> P. MOELLER and K. WAGNER, Radioactive Dating and Methods of Low Level Counting, Proc. Symp. IAEA, Monaco 1967, p. 177.

<sup>8</sup> R. McCORKELL, E. L. FIREMAN, and C. C. LANGWAY, Science **158**, 1690 [1967].

## Zu den Auswahlregeln der internen Rotation und Rotation bei vollständig asymmetrischen Molekülen mit einem zweizähligen Hinderungspotential

H. DREIZLER

Physikalisches Institut der Universität Freiburg

und K. D. MÖLLER

Physics Department, Fairleigh Dickinson University,  
Teaneck, New Jersey, USA

(Z. Naturforsch. 23 a, 1221—1223 [1968]; eingegangen am 21. Mai 1968)

Die Moleküle, die in dieser Arbeit betrachtet werden, bestehen aus zwei Teilen, die gegeneinander rotieren (tordieren) können. Die interne Rotation sei

durch ein zweizähliges Potential behindert. Keiner der beiden Molekülteile besitzt eine Symmetrieachse höher als  $C_2$ . Außerdem rotiere das Molekül als Ganzes. In dem Modell, das dem Hamilton-Operator zugrunde liegt, werden beide Teile als starr angenommen. Das Modell besitzt also nur einen internen Freiheitsgrad, den der internen Rotation, und die drei äußeren Freiheitsgrade der Rotation. Die Behandlung schließt an eine Arbeit von QUADE<sup>1</sup> an, der den Hamilton-Operator für ein solches Molekülmodell und seine Behandlung nach Methoden der Störungsrechnung angab. Der betrachtete Molekültyp wurde von ihm in drei Formen behandelt.

Klasse I Beide Molekülteile besitzen eine  $C_{2v}$ -Symmetrie um die interne Rotationsachse.

<sup>1</sup> C. R. QUADE, J. Chem. Phys. **47**, 1073 [1967].



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht:  
Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

Klasse II Der schwerere Teil des Moleküls, der Rumpf, besitzt keine Symmetrie, der andere Teil, der Rotor, besitzt  $C_2$ -Symmetrie um die interne Rotationsachse.

Klasse III Der schwerere Teil des Moleküls, der Rumpf, besitzt  $C_2$ -Symmetrie um die interne Rotationsachse, der Rotor besitzt keine Symmetrie.

Die folgenden Betrachtungen dieser Arbeit gelten für alle drei Klassen, weiter unten nur für Klasse I. Es wird der Hamilton-Operator von QUADE übernommen, dessen Invarianzgruppe festgestellt und gruppentheoretisch die *Auswahlregeln* bestimmt.

Als Näherungsoperator dient für alle drei Formen

$$H^0 = H_T^0 + H_R^0, \quad (1)$$

wobei  $H_T^0 = -\mu_T^0 \frac{\partial^2}{\partial \alpha^2} + \frac{1}{2} V_2 (1 - \cos 2\alpha)$  (2)

und  $H_R^0 = \mu_{xx}^0 P_x^2 + \mu_{yy}^0 P_y^2 + \mu_{zz}^0 P_z^2.$  (3)

Für die Klasse II zählen wir  $\mu_{zy}^0 (P_y P_z + P_z P_y)$  zu den Störoperatoren.

Der Hamilton-Operator (1) ist invariant gegenüber den Operationen der Gruppe

$$C_{2v} \otimes V \quad (4)$$

Die Form der  $\Phi_{Tn\Gamma}$  sei hier wiedergegeben:

$$\begin{aligned} \Phi_{TnA_1} &= Ue_{2r} = \sum_k De_{2k}^{(2r)} (-1)^k \cos 2k\alpha & n = 2r, \\ \Phi_{TnA_2} &= Uo_{2r+1} = \sum_k Do_{2k+1}^{(2r+1)} (-1)^k \cos (2k+1)\alpha & n = 2r, \\ \Phi_{TnB_1} &= Uo_{2r} = \sum_k Do_{2k}^{(2r)} (-1)^k \sin 2k\alpha & n = 2r-1, \\ \Phi_{TnB_2} &= Ue_{2r+1} = \sum_k De_{2k+1}^{(2r+1)} (-1)^{k+1} \sin (2k+1)\alpha & n = 2r+1. \end{aligned} \quad (9 \text{ a-d})$$

Die Eigenwerte  $E_{Tn\Gamma}$  ergeben sich nach

$$E_{Tn\Gamma} = \mu_T^0 b_{n\Gamma}, \quad (10)$$

wobei die  $b_{n\Gamma}$  und die D tabuliert sind <sup>4, 5</sup>.

Die reinen Torsionseigenwerte  $E_{Tn\Gamma}$  geben ein Energieschema, wie es in Abb. 1 wiedergegeben ist.

Um das Energieschema von (1) zu ermitteln, muß man auf jedem Torsionsniveau ein Rotationstermschema

$C_{2v}$	E	$\sigma$	T	$\sigma T$
$A_1$	1	1	1	1
$A_2$	1	1	-1	-1
$B_1$	1	-1	1	-1
$B_2$	1	-1	-1	1

Tab. 1. Charaktertafel der Gruppe  $C_{2v}$ .

V	E	$C_{2x}$	$C_{2y}$	$C_{2z}$
A	1	1	1	1
$B_x$	1	1	-1	-1
$B_y$	1	-1	1	-1
$B_z$	1	-1	-1	1

Tab. 2. Charaktertafel der Gruppe V.

<sup>2</sup> R. S. MULLIKEN, Phys. Rev. **59**, 873 [1941].

<sup>3</sup> C. v. WINTER, Physica **20**, 274 [1954].

<sup>4</sup> G. BLANCH and L. RODES, J. Wash. Acad. Sci. **45**, 166 [1955].

<sup>5</sup> Tables Relating to Mathieu Functions, Columbia University Press 1951.

Hierbei ist

$$C_{2v}: (E), (\sigma), (T), (\sigma T) \quad (5)$$

mit  $\sigma = \alpha \rightarrow -\alpha, \quad T = \alpha \rightarrow \alpha + \pi.$  (6)

Weiterhin ist

$$V: (E), (C_{2x}), (C_{2y}), (C_{2z}) \quad (7)$$

die gewöhnliche Vierergruppe mit der üblichen Definition der  $C_{2g}$ <sup>2, 3</sup>. Sie wirken nur auf die Eulerschen Winke, also nicht auf den Torsionswinkel  $\alpha$ . Die Charaktertafeln der Gruppe  $C_{2v}$  und V sind in Tab. 1 und 2 gegeben.

Die Charaktertafel der Gruppe  $C_{2v} \otimes V$  läßt sich damit leicht bestimmen.

Die Eigenlösungen von (1) sind ein Produkt aus Mathieu-Eigenfunktionen  $\Phi_T$  und Eigenlösungen des starren asymmetrischen Kreisels  $\Phi_R$ :

$$\Phi_{Tn\Gamma} \cdot \Phi_{R\gamma}, \quad (8)$$

wobei  $\Gamma$  und  $\gamma$  die Spezies der Gruppe  $C_{2v}$  bzw. V charakterisieren und  $n$  in den Gl. (9a) bis (9d) erklärt ist. Die Funktionen (8) dienen als Basisfunktionen für den vollständigen Hamilton-Operator  $H$ , dessen Eigenfunktionen dann gewisse Linearkombinationen aus (8) sind.

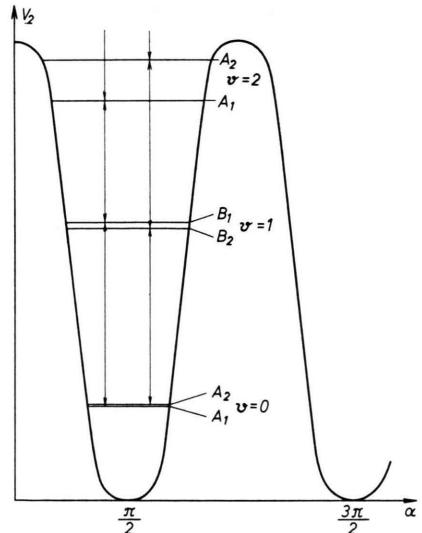


Abb. 1. Energietermschema eines behinderten, zweizähligen Rotors.

aus den Eigenwerten von  $H_R^0$  aufzubauen. Dieses Rotationstermschema ist für alle Torsionszustände gleich.

Die folgende Diskussion beschränkt sich auf Moleküle der Klasse I.

Den vollständigen Hamilton-Operator erhält man, wenn man (1) durch  $H_{RT}$  und  $H_T$  nach QUADE Formel (12 a) und (12 b) ergänzt.

$$H_I = H_T^0 + H_R^0 + H_{RT} + H_T. \quad (11)$$

Mit den bei QUADE angegebenen Ausdrücken stellt man fest, daß (11) nur noch gegen eine Untergruppe von  $C_{2v} \otimes V$ , nämlich

$$\text{G8: } (E), (T), (C_{2x}\sigma), (C_{2x}\sigma T), (C_{2y}\sigma), \\ (C_{2y}\sigma T), (C_{2z}), (C_{2z}T) \quad (12)$$

invariant ist. G8 läßt sich als direktes Produkt der drei Gruppen mit je zwei Elementen

$$\begin{aligned} & (E), (C_{2x}\sigma) \\ & (E), (C_{2z}T) \\ & (E), (T) \end{aligned}$$

schreiben, und die Charaktertafel von G8 ergibt sich in einfacher Weise als Tab. 3.

Zwischen den Spezies  $\Gamma\gamma$  des direkten Produkts  $C_{2v} \otimes V$  und den Spezies  $\Gamma$  der Gruppe G8 besteht die in Tab. 4 angegebene Korrelation.

Die Eigenfunktionen von (11), klassifiziert nach den Spezies der Gruppe G8, sind Linearkombinationen der Eigenfunktionen von (1), ausgewählt nach den Korrelationen in Tab. 4. Beispielsweise setzen sich Eigenfunktionen der Spezies  $B_{yz}$  nur aus Funktionen der Spezies  $A_1B_x$  und  $B_1B_y$  zusammen. Bei dieser Molekülform kann das Dipolmoment nur eine Komponente  $\mu_z$  haben, die unabhängig von  $\alpha$  ist. Sie kann der Spezies  $B_{xy}$  der Gruppe G8 zugeordnet werden.

G8	E	T	$C_{2x}\sigma$	$C_{2x}\sigma T$	$C_{2y}\sigma$	$C_{2y}\sigma T$	$C_{2z}$	$C_{2z}T$
A	1	1	1	1	1	1	1	1
$B_{yz}$	1	1	1	1	-1	-1	-1	-1
$B_{zx}$	1	1	-1	-1	1	1	-1	-1
$B_{xy}$	1	1	-1	-1	-1	-1	1	1
$A'$	1	-1	1	-1	1	-1	1	-1
$B'_{yz}$	1	-1	1	-1	-1	1	-1	1
$B'_{zx}$	1	-1	-1	1	1	-1	-1	1
$B'_{xy}$	1	-1	-1	1	-1	1	1	-1

Tab. 3. Charaktertafel der Gruppe G8.

$C_{2v} \otimes V$	G8	$C_{2v} \otimes V$	G8
$A_1A$	$> A$	$A_2A$	$> A'$
$B_1B_z$		$B_2B_z$	
$A_1B_x$	$> B_{yz}$	$A_2B_x$	$> B'_{yz}$
$B_1B_y$		$B_2B_y$	
$A_1B_y$	$> B_{zx}$	$A_2B_y$	$> B'_{zx}$
$B_1B_x$		$B_2B_x$	
$A_1B_z$	$> B_{xy}$	$A_2B_z$	$> B'_{xy}$
$B_1A$		$B_2A$	

Tab. 4. Korrelationstabelle der Gruppen  $C_{2v} \otimes V$  und G8.

Für Dipolübergänge ergeben sich damit folgende Auswahlregeln, die in den Spezies von G8 formuliert werden:

$$\begin{aligned} A &\longleftrightarrow B_{xy}, \quad B_{yz} \longleftrightarrow B_{zx}, \\ A' &\longleftrightarrow B'_{xy}, \quad B'_{yz} \longleftrightarrow B'_{zx}. \end{aligned} \quad (13)$$

Wie mit Tab. 4 festgestellt werden kann enthalten die Auswahlregeln (13), die Auswahlregeln für die Rotationsübergänge eines starren asymmetrischen Kreisels mit einer  $\mu_z$ -Dipolmomentkomponente

$$A \longleftrightarrow B_z, \quad B_x \longleftrightarrow B_y \quad (14)$$

aber zusätzlich noch die „verbotenen“ Rotationsübergänge

$$A \longleftrightarrow A, \quad B_x \longleftrightarrow B_x, \quad B_y \longleftrightarrow B_y, \quad B_z \longleftrightarrow B_z. \quad (15)$$

Die Auswahlregeln (13) enthalten weiterhin die „verbotenen“ Torsionsübergänge

$$A_1 \longleftrightarrow B_1, \quad A_2 \longleftrightarrow B_2. \quad (16)$$

Die „verbotenen“ Übergänge (15) und (16) sind eine Folge der durch  $H_{RT}$  erzwungenen Mischung von Torsions- und Rotationsfunktionen.

Bei einer nicht zu großen Wechselwirkung  $H_{RT}$  kann man in Näherung feststellen: Das Rotationsspektrum setzt sich aus  $\mu_z$ -Übergängen und schwachen verbotenen Übergängen in verschiedenen Torsionszuständen zusammen. Das Torsionsspektrum besteht aus verbotenen Übergängen, sie bilden Banden mit einer Rotationsfeinstruktur.

In strenger Sprechweise kann man nur von Torsions-Rotations-Übergängen sprechen, die je nach Frequenz im Gebiet der Mikrowellen oder im fernen Infrarot beobachtet werden.

Es ist beabsichtigt, die Auswahlregeln für Molekülmodelle der Klassen II und III in analoger Weise zu bearbeiten.