

Inferferometrische Messungen der lasererregten Resonanzfluoreszenz des Jodmoleküls

TH. HALLDORSSON und E. MENKE

Sektion Physik der Universität München

(Z. Naturforsch. 25 a, 1356—1358 [1970]; eingegangen am 26. Juni 1970)

Die Molekülkonstanten des Jodmoleküls im Grundzustand wurden von RANK und RAO¹ mit großer Genauigkeit ermittelt, wobei interferometrische Messungen von RANK und BALDWIN² und UV-Messungen von VERMA³ zugrunde lagen⁴. Mit Hilfe dieser Molekülkonstanten und mit Hilfe von Messungen des Dublettabstandes der P($J' + 1$)- und R($J' - 1$)-Übergänge können die Quantenzahlen der von verschiedenen Laserlinien bei Resonanzmessungen angeregten Rotationszustände bestimmt werden. Diese Quantenzahlen, richtig zugeordnet, sind notwendig, um die Molekülkonstanten für den angeregten Zustand aus Resonanzfluoreszenzmessungen zu ermitteln.

Die bisherigen Zuordnungen der Quantenzahlen der angeregten Rotationszustände^{5—9} stimmen nicht überein. In der vorliegenden Arbeit wird versucht, eine Klärung durch Messungen der Resonanzfluoresenzspektren des Jods bei Anregung mit einem He-Ne-Laser (6328 Å) und einem Argonionenlaser (5145 Å und 5017 Å) unter Verwendung eines hochauflösenden Fabry-Pérot-Interferometers herbeizuführen.

Zur Anregung der Fluoresenzspektren standen der He-Ne-Laser (Modell 125) und der Argonionenlaser (Modell 140) der Fa. Spectra Physics zur Verfügung, mit denen der Joddampf bei Zimmertemperatur in einer evakuierten 0,5 ml-Küvette fokussiert beleuchtet wurde.

Das selbstgebaute Fabry-Pérot-Interferometer besteht aus zwei Platten aus Quarzglas mit einem Durchmesser von 50 mm, die von der Fa. B. Halle Nachf., Berlin, hergestellt wurden und eine Ebenheit von $\lambda/100$ besitzen. Sie sind durch einen Abstandsring aus Invarstahl getrennt. Die Einstellung der optischen Wellenlänge des Interferometers erfolgt durch Regulierung des Gasdruckes in einem thermostatisierbaren Gehäuse. Das vom Interferometer kommende Licht wird zunächst in einem Doppelmonochromator (Fa. RSV, Hechendorf, OBB.) vorzerlegt und mit einem auf -20°C gekühlten Photomultiplier (RCA, Typ 7265) registriert. Eine zusätzliche Steigerung der Multiplierempfindlichkeit wird mit Hilfe einer magnetischen Defokussierung nach TOPP u. a.¹⁰ erzielt. Die Aufzeichnung der Spektren erfolgt mit einem X-Y-Schreiber. Die druckproportio-

Sonderdruckanforderungen an Dipl.-Phys. E. MENKE, Sektion Physik der Universität München, Lehrstuhl Prof. Brandmüller, D-8000 München 13, Amalienstraße 54.

¹ D. H. RANK u. B. S. RAO, J. Mol. Spectroscopy 13, 34 [1964].

² D. H. RANK u. W. M. BALDWIN, J. Chem. Phys. 19, 1210 [1951].

³ R. D. VERMA, J. Chem. Phys. 32, 738 [1960].

⁴ Nach Fertigstellung dieser Arbeit sind von LE ROY⁵ neue Molekülkonstanten veröffentlicht worden, denen ebenfalls die Messungen^{2, 3} zugrunde liegen.

nale Spannung für den X-Kanal liefert ein Hg-Manometer mit einem koaxial ausgespannten Widerstandsdräht. Die Abweichungen von der Linearität sind kleiner als 1 Torr.

Das Interferometer wurde mit zwei Plattenabständen betrieben. Zur Messung des Plattenabstands wurde die Dicke des Abstandsrings mechanisch auf 1/1000 mm gemessen, während die Abstandsverringerung durch Zusammendrücken der Platten bei ihrer Paralleljustierung interferometrisch bestimmt wurde. Beim Abstand 10,030 mm betrug der freie Spektralbereich des Interferometers in der Mitte des über vier Ordnungen mit H_2 regelbaren Druckbereiches $0,4985 \text{ cm}^{-1}$, die apparative Halbwertsbreite $0,012 \text{ cm}^{-1}$. Beim Abstand 0,696 mm ergab sich entsprechend ein freier Spektralbereich von $7,18 \text{ cm}^{-1}$. Als Dispersionsgas wurde hier Butan verwendet.

Bei Erregung mit der He-Ne-Laserlinie (6328 Å) wurde das Dublett mit dem Abstand $4,80 \text{ cm}^{-1}$ untersucht. Die Übersichtsmessung an der Erregerlinie mit kleinem Abstand der Interferometerplatten ergab, daß der Übergang im P-Zweig stattfindet, da die nicht mit der Erregerlinie zusammenfallende Fluoreszenzlinie auf der kurzweligen Seite der Erregerlinie liegt. Abbildung 1 zeigt die Abnahme des mit großem Plattenabstand gemessenen Dublettabstandes, welcher aus den

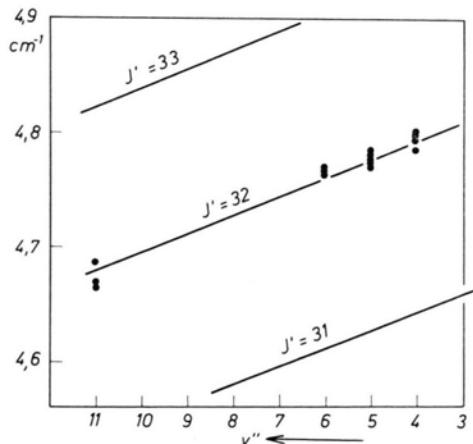


Abb. 1. Abhängigkeit des Dublettabstandes der P($J' + 1$)- und R($J' - 1$)-Übergänge von ν'' für das Dublett mit dem Linienabstand $4,8 \text{ cm}^{-1}$ bei Erregung mit der Linie 6328 Å des He-Ne-Lasers. Die durchgezogenen Linien stellen das Ergebnis der Rechnung mit den Molekülkonstanten von RANK u. RAO¹ dar.

⁵ R. J. LE ROY, J. Chem. Phys. 52, 2678 [1970].

⁶ J. I. STEINFELD, J. D. CAMPBELL u. N. A. WEISS, J. Mol. Spectroscopy 29, 204 [1969].

⁷ S. EZEKIEL u. R. WEISS, Phys. Rev. Letters 20, 91 [1968].

⁸ D. R. HATZENBUHLER, Vortrag auf der International Conference of Raman Spectroscopy, Ottawa 1969.

⁹ E. MENKE, Z. Naturforsch. 25 a, 442 [1970].

¹⁰ J. A. TOPP, H. W. SCHRÖTTER, H. HACKER u. J. BRANDMÜLLER, Rev. Sci. Instr. 40, 1164 [1969].

Molekülkonstanten von RANK und RAO¹ mit Hilfe der dort angegebenen Gleichungen bestimmt wurde. Für die beiden benachbarten Rotationsquantenzahlen verlaufen die Kurven parallel dazu in einem Abstand von ca. $0,15 \text{ cm}^{-1}$, während die Streuung der Meßwerte unter $0,02 \text{ cm}^{-1}$ liegt. Aus Abbildung 1 ist damit die Zuordnung $3'' - 6' P(33)$, die auch von STEINFELD u. a.⁶ für dieses Dublett angegeben wurde, klar ersichtlich.

Bei Anregung mit der Laserlinie $\text{Ar}^+ - 5145 \text{ Å}$ werden neben einigen anderen Linien zwei etwa gleichstarke Doublets beobachtet (Abb. 2). Je eine Linie der

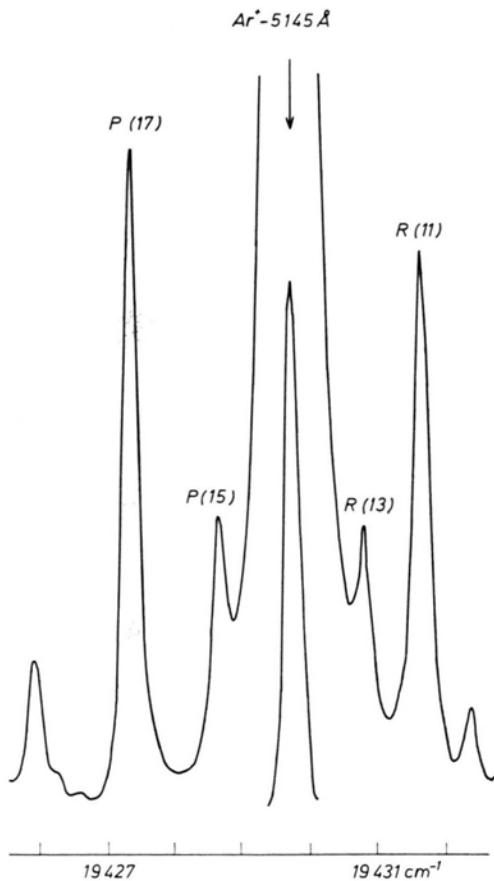


Abb. 2. Resonanzfluoreszenzspektrum in der Umgebung der Erregerlinie $\text{Ar}^+ - 5145 \text{ Å}$, aufgenommen mit dem Fabry-Pérot-Interferometer (Plattenabstand 0,696 mm). Die Erregerlinie wurde mit verringelter Empfindlichkeit registriert.

beiden Doublets liegt links und rechts der Erregerlinie, während die zweite jeweils mit der Erregerlinie zusammenfällt. Das langwelligere Dublett mit einem Doubletabstand $2,46 \text{ cm}^{-1}$ ist R-erregt, das kurzwelligere mit dem Doubletabstand $1,87 \text{ cm}^{-1}$ P-erregt. Für diese beiden Doublets ergaben sich die Rotationsquantenzahlen $J' = 16$ bzw. $J' = 12$ (Abb. 3). Diese beiden Werte liegen jeweils um eine Quantenzahl höher als bei STEINFELD u. a.⁶. Mit wachsendem Abstand von der

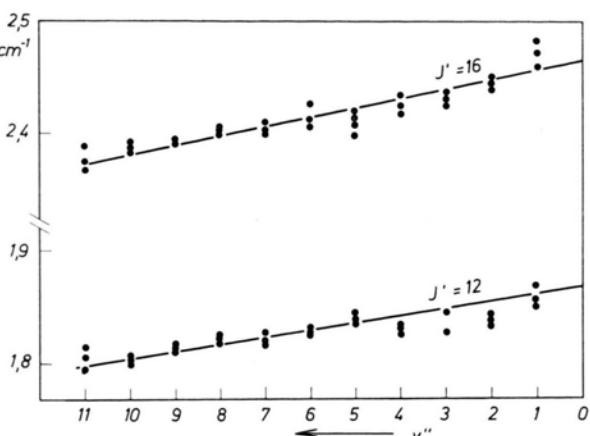


Abb. 3. Abhängigkeit des Doubletabstandes der $P(J'+1)$ - und $R(J'-1)$ -Übergänge von v'' für die beiden von $\text{Ar}^+ - 5145 \text{ Å}$ erregten Doublets mit den Linienabständen $1,8 \text{ cm}^{-1}$ und $2,4 \text{ cm}^{-1}$. Die durchgezogene Linie stellt das Ergebnis der Rechnung mit den Molekülkonstanten von RANK u. RAO¹ dar.

Erregerlinie spaltet die den beiden Doublets gemeinsame Linie auf, und zwar so, daß sich die beiden Doublets mit zunehmendem v'' immer mehr überschneiden. Nur unter dieser Annahme ergibt sich die gemessene, in Abb. 3 dargestellte Abhängigkeit der Doubletabstände von v'' . Bei $v'' = 10$ beträgt die Aufspaltung nur $0,072 \text{ cm}^{-1}$ und kann deshalb mit einem üblichen Gitterspektrographen nicht mehr gemessen werden. Abbildung 4 zeigt die interferometrisch gemessene Aufspaltung. Die durchgezogene Linie gibt das Ergebnis der Rechnung mit den Molekülkonstanten von RANK und RAO¹ wieder, wobei die Zuordnung $0'' - 43'$ für beide Doublets zugrunde gelegt wurde. Damit allerdings die theoretische Kurve durch Null ging, mußte

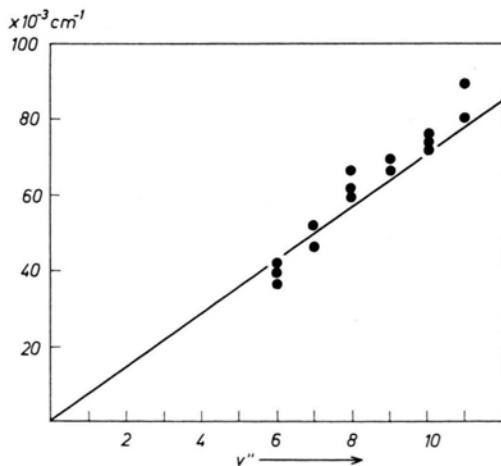


Abb. 4. Abhängigkeit der Aufspaltung der gemeinsamen Linie beider von $\text{Ar}^+ - 5145 \text{ Å}$ erregten Doublets von v'' . Die durchgezogene Linie stellt das Ergebnis der Rechnung mit den Molekülkonstanten von RANK u. RAO¹ dar.

sie um den konstanten Wert $-0,054 \text{ cm}^{-1}$ verschoben werden¹¹. Die Zuordnung $1'' - 49'$ für beide Dubletts würde eine viermal so große Verschiebung erfordern, so daß die oben angegebene Zuordnung wahrscheinlicher ist. Die in 9 vorgeschlagene gemischte Zuordnung $1'' - 49'$ und $0'' - 43'$ ist deswegen ausgeschlossen, weil in diesem Fall nach der Rechnung die Dubletts mit zunehmendem v'' sich nicht mehr überschneiden, sondern schnell voneinander entfernen. Die beiden schwächeren Linien beiderseits der Erregerlinie (Abb. 2) gehen von $J' = 14$ aus. Dieses Niveau wird unter der Berücksichtigung der Auswahlregel $\Delta J = \pm 2$ von den beiden angeregten Rotationsniveaus $J' = 16$ und $J' = 12$ durch Stöße besetzt.

Es wurde auch das von der Laserlinie $\text{Ar}^+ \cdot 5017 \text{ Å}$ erregte Dublett mit dem Dublettabstand $4,1 \text{ cm}^{-1}$ untersucht. In derselben Weise wie oben ergab sich aus dem gemessenen Dublettabstand die Rotationsquantenzahl

¹¹ Möglicherweise verschwindet diese Diskrepanz bei Verwendung der in Fußnote ⁴ erwähnten Molekülkonstanten von Le ROY ⁵.

$J' = 27$ für den angeregten Zustand, wobei die Erregung im R-Zweig stattfindet. Über den angeregten Schwingungszustand läßt sich nichts sicheres aussagen, da er nur 100 cm^{-1} von der Dissoziationsgrenze entfernt ist 9 . Für den Grundzustand gilt mit großer Wahrscheinlichkeit $v'' = 0$.

In Tab. 1 sind die neuen Zuordnungen zusammengestellt.

	Laserlinie	J'	Übergang
He-Ne	6328 Å	15 798,00 cm^{-1}	32 $3'' - 6' \text{ P}(33)$
Ar^+	5145 Å	19 429,73 cm^{-1}	16 $0'' - 43' \text{ R}(15)$ 12 $0'' - 43' \text{ P}(13)$
Ar^+	5017 Å	19 926,04 cm^{-1}	27 $0'' - ? \text{ R}(26)$

Tab. 1. Die Ergebnisse.

Die Arbeit wurde mit Mitteln der Deutschen Forschungsgemeinschaft durchgeführt. Wir danken Herrn Prof. BRANDMÜLLER für die Bereitstellung von Institutsmitteln und Herrn Prof. MOSER für sein Interesse am Fortgang dieser Arbeit.

Unelastische Elektronenstreuung an ^{140}Ce bis 3,5 MeV Anregungsenergie

R. PITTHAN

Institut für Technische Kernphysik
der Technischen Hochschule Darmstadt

(Z. Naturforsch. **25 a**, 1358—1359 [1970]; eingegangen am 1. Juli 1970)

From electron scattering experiments (scattering angle 141° , primary energies 60 and 50 MeV) ground state radiation widths were determined for the levels at 1.60 (2^+), 2.08 (4^+), 2.46 (3^-), 2.90, 3.12, and 3.32 MeV.

Spins and parities of the last three levels which were known as 1^+ or 2^+ , could be classified as 2^+ .

Ergebnisse aus Experimenten mit unelastischer Elektronenstreuung liegen bisher für leichte und mittelschwere Kerne sowie für Blei und Wismut vor. Für große Kernladungen gilt die Bornsche Näherung nicht mehr. Rechnungen mit Hilfe von DWBA (Distorted Wave Born Approximation)-Programmen, die zur Auswertung von Messungen an schweren Kernen nötig sind, stehen seit einiger Zeit allgemein zur Verfügung. Allerdings erfordern Experimente für schwere Elemente wegen der großen Niveaudichte auch bei kleinen Anregungsenergien eine hohe Energieauflösung. Eine Ausnahme bilden die Kerne mit abgeschlossenen Nukleonenschalen, bei denen die niedrig liegenden Niveaus verhältnismäßig große Energieabstände haben.

Um Erfahrungen mit Targetmaterialien und Auswerteverfahren im Bereich der seltenen Erden zu ge-

winnen, ist als erstes das Cer untersucht worden, denn das Hauptisotop (88,5%) ^{140}Ce hat 82 Neutronen. Die Messungen wurden am Darmstädter Linearbeschleuniger ¹ durchgeführt. In Yale waren bereits im Zusammenhang mit der elastischen Streuung ² an ^{142}Nd auch die tiefsten Niveaus von ^{142}Nd mit unelastischer Elektronenstreuung untersucht worden, der Preprint hierüber ³ enthält kein Spektrum.

Selbsttragende Cerfolien mit natürlichem Isotopengemisch dienten als Target. Abbildung 1 zeigt die bei einem Streuwinkel von 141° und Primärenergien von $E_0 = 50$ und 60 MeV gemessenen Spektren. Wie man sieht, konnten die Zustände bei 1,60, 2,08 und 2,46 MeV sehr gut aufgelöst werden. Diejenigen bei 2,90, 3,12 und 3,32 MeV ließen sich mit dem Auswerteprogramm ⁴ ebenfalls auswerten. Das 0^+ -Niveau bei 1,90 MeV war nicht sichtbar, auch das 6^+ -Niveau bei 2,11 MeV bleibt bei den hier erreichbaren Impulsübertragungen $q < 0,6 \text{ fm}^{-1}$ unter der Nachweisgrenze. Die Abbildung zeigt deutlich, daß das Verhältnis der Liniensintensitäten in beiden Spektren stark von der Multipolarität des Übergangs abhängt. Die im ^{142}Ce (11,5%) bekannten Zustände, von denen Störungen möglich sind (im wesentlichen das 2^+ -Niveau bei 1,54 MeV und das 3^- -Niveau bei 1,66 MeV), konnten beim Fit des Spektrums nicht nachgewiesen werden und wurden daher vollständig vernachlässigt; insoweit sind die Ergebnisse noch mit einer gewissen Unsicherheit behaftet. Die unelastischen Wirkungsquerschnitte wurden mit dem Duke-Code für das Tröpfchenmodell ^{5, 6},

¹ F. GUDDEN, G. FRICKE, H.-G. CLERC u. P. BRIX, Z. Phys. **181**, 453 [1964].

² D. W. MADSEN, L. S. CARDMAN, J. R. LEGG, E. F. GUNDERSHEIM u. C. K. BOCKELMAN, Phys. Rev. Lett. **23**, 1122 [1969].

³ D. W. MADSEN, L. S. CARDMAN, J. R. LEGG, E. F. GUNDERSHEIM u. C. K. BOCKELMAN, Preprint 1969.

⁴ O. TITZE, Laborbericht **31**, Institut für Technische Kernphysik der Technischen Hochschule Darmstadt 1967, unveröffentlicht.

⁵ J. F. ZIEGLER, Report YALE-2726E-49.

⁶ S. T. TUAN, L. E. WRIGHT u. D. S. ONLEY, Nucl. Instr. Meth. **60**, 70 [1968].

die der elastischen Streuung mit dem Rechenprogramm von FISCHER und RAWITSCHER⁷ berechnet. Eine Kontrollrechnung für die elastischen Wirkungsquerschnitte mit dem Programm von BÜHRING⁸ brachte für 50 MeV eine Übereinstimmung von besser als $\frac{1}{2}\%$. Die benutzten Parameter des Grundzustandes und der Übergangs-ladungsverteilung $c=5,78(3)$ und $t=2,30(8)$ fm stammen aus einer Messung am Myonenatom.⁹

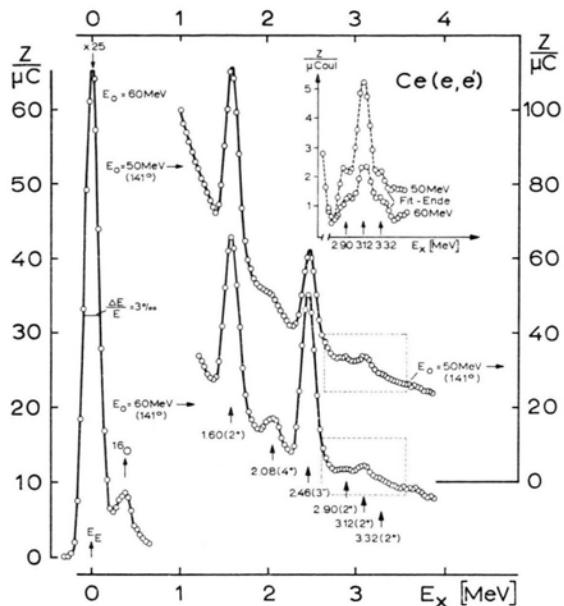


Abb. 1. Elektronenstreuung an Cerfolien von 63 mg/cm^2 (50 MeV) und 21 mg/cm^2 (60 MeV). Das obere (rechte Ordinate) Spektrum wurde bei 50 MeV Primärenergie, das untere (linke Ordinate) bei 60 MeV gemessen. Rechts oben ist nach Abzug des angepaßten Untergrundes der Bereich zwischen 2,7 und 3,5 MeV Anregungsenergie vergrößert herausgezeichnet. Links die elastische Linie für 60 MeV Primärenergie.

Tabelle 1 gibt in den ersten beiden Spalten die Anregungsenergien, Spins und Paritäten nach¹⁰. In Spalte 3 sind die berechneten Verhältnisse der Wirkungsquerschnitte bei 60 und 50 MeV Primärenergie angegeben. Sie ändern sich nur schwach mit den Parametern c und t . Wie Spalte 4 zeigt, können die Spins und Paritäten der Zustände bei 2,90, 3,12 und 3,32, für die BAER et al.¹⁰ 1⁺ oder 2⁺ zulassen, weitgehend modellunabhängig zu 2⁺ bestimmt werden.

Von den 8 bekannten Niveaus zwischen 2,35 und

2,55 MeV ist im Spektrum nur der 3⁻-Zustand bei 2,46 MeV eindeutig nachweisbar. Aus dem Verhältnis der Wirkungsquerschnitte bei den beiden Primärenergien und daraus, daß die Linie gegenüber der elastischen Linie nicht verbreitert war, kann der Beitrag der anderen Linien zu weniger als 10% abgeschätzt werden.

Die hier gefundene Strahlungsbreite (Tab. 1) des 1,60 MeV-Niveaus ist in Übereinstimmung mit dem Wert von OFER und SCHWARZSCHILD¹¹, die 16 WE angeben. Für den 2,46 MeV-Übergang besteht eine Diskrepanz mit den Ergebnissen von HANSEN und NATHAN¹², die aus (α, α')-Experimenten 93 WE fanden. Die Strahlungsbreite des 4⁺-Zustandes ist hier erstmals bestimmt worden.

E_X/MeV	I^π	Y_{Duke}	Y_{exp}	$\Gamma_\gamma^0/\text{eV}$	Γ_γ^0/Γ_W
1,60	2 ⁺	0,65	$0,67 \pm 0,05$	$6,7 \cdot 10^{-3}$	18 ± 2
2,08	4 ⁺	2,20	$2,27 \pm 0,56$	$1,5 \cdot 10^{-8}$	21 ± 4
2,46	3 ⁻	1,28	$1,31 \pm 0,11$	$6,2 \cdot 10^{-6}$	26 ± 3
2,90	1 ⁺	0,29	—	—	—
	2 ⁺	0,65	$0,58 \pm 0,19$	$9,5 \cdot 10^{-3}$	$1,3 \pm 0,5$
3,12	1 ⁺	0,29	—	—	—
	2 ⁺	0,65	$0,58 \pm 0,13$	$26 \cdot 10^{-3}$	$2,6 \pm 0,5$
3,32	1 ⁺	0,29	—	—	—
	2 ⁺	0,65	$0,73 \pm 0,28$	$19 \cdot 10^{-3}$	$1,3 \pm 0,6$

Tab. 1. Vorläufige Ergebnisse. Y ist das Verhältnis der bei 60 MeV und 50 MeV Primärenergie gemessenen differentiellen Wirkungsquerschnitte ($\Theta=141^\circ$). Spins und Paritäten I^π nach Ref.¹⁰. Γ_W : Weisskopf-Einheit (WE) nach WILKINSON¹³.

Die bei den vorläufigen Ergebnissen dieser Arbeit in Tab. 1 angegebenen Fehler setzen sich zusammen aus dem Fehler der Berechnung der elastischen und unelastischen Wirkungsquerschnitte (je 1%), systematischen experimentellen Fehlern der Apparatur (2%), der Unsicherheit in der Untergrundbestimmung (2 bis 20%) und dem statistischen Fehler der Anpassung. Alle Fehler wurden linear addiert. Die Arbeit wird fortgesetzt.

Ich danke Prof. P. BRIX und Dozent Dr. H.-G. CLERC für die Anregung zu dieser Arbeit, TH. WALCHER für seine Mithilfe bei den Experimenten und W. SCHÜTZ für die Berechnung des elastischen Wirkungsquerschnittes bei 50 MeV mit dem Bühring-Programm. Die Rechnungen wurden auf der IBM 7090 und dem TR 440 im Deutschen Rechenzentrum in Darmstadt und auf der IBM 7040 des Rechenzentrums der Technischen Hochschule Darmstadt durchgeführt. Die Arbeit wurde mit Mitteln des Bundesministeriums für Bildung und Wissenschaft unterstützt.

⁷ C. R. FISCHER u. G. H. RAWITSCHER, Phys. Rev. **135**, B 377 [1964].

⁸ H. A. BENTZ, R. ENGFER u. W. BÜHRING, Nucl. Phys. **A 101**, 527 [1967].

⁹ A. CH. THOMPSON, Thesis 1969, Report CAR-882-24.

¹⁰ H. W. BAER, J. J. REIDY u. M. L. WIEDENBECK, Nucl. Phys. **A 113**, 33 [1968].

¹¹ S. OFER u. A. SCHWARZSCHILD, Phys. Rev. **116**, 725 [1959].

¹² O. HANSEN u. N. NATHAN, Nucl. Phys. **42**, 197 [1963].

¹³ D. H. WILKINSON, in F. AJZENBERG-SELOVE, Nucl. Spectroscopy, New York und London 1960.