

## NOTIZEN

Nuclear Quadrupole Resonance of  $N^{14}$  in Pyridine Complexes

TAE-KYU HA \* and C. T. O'KONSKI

Department of Chemistry, University of California, Berkeley  
Berkeley, California 94 720(Z. Naturforsch. **25 a**, 1509—1510 [1970]; received 15 July 1970)

Shifts in the nuclear quadrupole coupling are detected for  $N^{14}$  in pyridine complexes by pure nuclear quadrupole resonance spectroscopy (NQR). These are compared with values obtained by the Townes-Dailey method using a simple molecular-orbital (MO) calculation for the pyridine-pyrrole system.

The purpose of this note is to present nuclear quadrupole data for  $N^{14}$  in hydrogen bonded pyridine complexes (pyridine-chloroform, pyridine-pyrrole, and pyridine- $CH_3OH$ ), and to show that NQR spectroscopy is also a very useful tool in the studies of electronic distribution and structure of hydrogen bonded complexes along with more standard spectroscopic methods<sup>1</sup>: (i. e. IR, UV, NMR, etc.). 1 : 1 mixtures of pyridine-pyrrole, pyridine-chloroform, and pyridine- $CH_3OH$  were prepared. The samples were very slowly cooled to liquid nitrogen temperature. A modified Pound-Knight-Watkins type marginal NQR-spectrometer<sup>2</sup> with a frequency modulation (sine-wave, 500 Hz) was employed with a tank coil of large diameter ( $\sim 8$  cm), by which the saturation effects can be avoided and a better signal to noise ratio can be achieved at higher oscillation level of the spectrometer<sup>3</sup>. By a phase diagram study, it is found that the 1 : 1 complexes of these compounds are stable. Unfortunately X-ray studies for these complexes are not yet available, and a detailed structural analysis in terms of crystal structure is not yet possible.

Table 1 summarizes the observed NQR frequencies, the quadrupole coupling constants ( $eQq_{mol}$ ) and the asymmetry parameter ( $\eta$ ) of  $N^{14}$  in these complexes, measured at 77 °K. Corresponding values for gaseous and pure solid pyridine and pyrrole are also listed as a comparison. In Table 1 we notice a small shift in the quadrupole coupling constant as well as the asymmetry parameter of the complexes, compared with the pure compound. This shift, we believe, is due to the hydrogen bond formation in the complexes. Similar and extensive studies have been carried out on the solid state shift in the quadrupole coupling of  $N^{14}$  in ammonia and it has been concluded that the lone pair electron

Compounds	$eQq_{mol}$ <sup>a</sup> ; $\nu_{\pm}$			$\eta$
pyridine (gas)	4.88 <sup>b</sup>			0.41 <sup>b</sup>
pyridine (solid)	4.60 <sup>c</sup>			0.39 <sup>c</sup>
pyrrole (solid)	2.069 <sup>d</sup>			0.269 <sup>d</sup>
pyridine-chloroform	4.535;	3.833;	2.969	0.44
pyridine-pyrrole				
(pyridine-N)	4.287;	3.605;	2.825	0.48
(pyrrole-N)	2.122;	1.645;	1.522	0.10
pyridine- $CH_3OH$	— ;	— ;	2.686	

<sup>a</sup> in MHz.<sup>b</sup> G. SORENSEN, J. Mol. Spectr. **22**, 325 [1967].<sup>c</sup> L. GUIBE, C. R. Acad. Sci. Paris **250**, 3014 [1960].<sup>d</sup> L. GUIBE and E. A. C. LUCKEN, Mol. Phys. **14**, 73 [1968].Table 1. Quadrupole Coupling at  $N^{14}$  in pyridine complexes.

of the nitrogen is mainly responsible for this shift<sup>4, 5</sup>. As in the case of solid ammonia, the lone pair electrons of nitrogen are considered to be hydrogen bonded in these complexes. The systems under study represent prototypes of  $N \dots H-C$ ,  $N \dots H-N$ , and  $N \dots H-O$  of the hydrogen bond and it is of interest to notice that the NQR shifts in these systems follow the hydrogen bond strength<sup>1</sup>. In the system pyridine-pyrrole we notice the  $N^{14}$  quadrupole coupling to be less affected in the pyrrole molecule than in the pyridine molecule by the formation of the hydrogen bond, as shown in Table 1. This is presumably due to the fact that the nitrogen lone pair electrons in pyrrole are not directly associated with the  $N \dots H-N$  hydrogen bond formation in this complex.

An Extended Hückel MO calculation with charge iteration (self-consistent charge method) has been per-

	Experiment <sup>a</sup> ( $f$ ; $\eta$ )		MO ( $f$ ; $\eta$ )	
pyridine	0.527;	0.41	0.563;	0.55
pyrrole	0.227;	0.26	0.513;	0.29
pyridine-pyrrole				
(pyridine-N)	0.470;	0.48	0.536;	0.68
(pyrrole-N)	0.233;	0.10	0.491;	0.47

<sup>a</sup> We used  $eQq_{at}=9.10$  MHz, which was obtained from the Hartree-Fock-Roothaan SCF value of  $q_{at}(N^{14})$  and  $Q(N^{14})=1.56 \cdot 10^{-26}$  cm<sup>3</sup>: see C. T. O'KONSKI and T.-K. HA, J. Chem. Phys. **49**, 5354 [1968] and C. T. O'KONSKI and T.-K. HA, Quadrupole Coupling Constants of  $N^{14}$ , to be published in J. Chem. Phys.

Table 2. Comparison of  $f$  and  $\eta$  values in pyridine-pyrrole.

\* Present address: Physikalisch-Chemisches Institut der Universität Zürich, CH-8001 Zürich, Rämistr. 76 (Sonderdruckanforderungen).

<sup>1</sup> G. C. PIMENTEL and A. L. MCCLELLAN, The Hydrogen Bond, Freeman, San Francisco 1960.

<sup>2</sup> C. T. O'KONSKI et al., to be published.

<sup>3</sup> C. T. O'KONSKI and K. TORIZUKA, J. Chem. Phys. **51**, 461 [1969].

<sup>4</sup> S. S. LEHRER and C. T. O'KONSKI, J. Chem. Phys. **43**, 1941 [1965].

<sup>5</sup> T.-K. HA and C. T. O'KONSKI, J. Chem. Phys. **51**, 460 [1969].

formed for pyridine, pyrrole, and the pyridine-pyrrole system with standard atomic parameters<sup>6</sup>, and the TOWNES-DAILEY method<sup>7</sup> has been used to evaluate the  $f_z$  values (number of unbalanced  $p_z$ -electrons) and the asymmetry parameter, which is defined as:

$$\begin{aligned} f_z &= e Q q_{\text{mol}} / e Q q_{\text{at}} \\ &= N_z - \frac{1}{2} (N_x + N_y), \\ \eta &= 3 (N_x - N_y) / (2 N_z - N_x - N_y) \end{aligned}$$

where  $N_x$ ,  $N_y$ , and  $N_z$  are number of electrons in  $p_x$ ,  $p_y$ , and  $p_z$ -orbitals. In the MO-calculation we used the experimental geometry for pyridine and pyrrole, and the N-N distance  $R(\text{N} \dots \text{H}-\text{N})$  in the complex was set equal to  $3 \cdot 10 \text{ \AA}$ . The  $R(\text{N} \dots \text{H})$  distance is varied to obtain a potential energy curve for the complex. We obtained an asymmetric double minimum with energy minima at

$$R(\text{N} \dots \text{H}) = 0.80 \text{ \AA} \quad \text{and} \quad R(\text{N} \dots \text{H}) = 2.40 \text{ \AA}.$$

<sup>6</sup> R. REIN, N. FUKUDA, H. WIN, G. A. CLARK, and F. E. HARRIS, *J. Chem. Phys.* **45**, 4743 [1966].

<sup>7</sup> C. H. TOWNES and B. P. DAILEY, *J. Chem. Phys.* **17**, 782 [1949].

In the frame of these MO calculations the complex is more stable than the isolated molecules by an amount of 4.3 eV and 4.8 eV at these respective distances. Table 2 summarizes a comparison of the experimental and calculated values.  $f$  and  $\eta$  values for the pyridine-pyrrole system are obtained from the population analysis of the molecular orbitals at

$$R(\text{N} \dots \text{H}-\text{N}) = 3.10 \text{ \AA} \quad \text{and} \quad R(\text{N} \dots \text{H}) = 2.40 \text{ \AA}.$$

While for the pyridine-N the MO-calculation provides a reasonable qualitative trend,  $f$  and  $\eta$  values for the pyrrole-N are not at all satisfactory. One could further refine the analysis to obtain better agreement with experiment in the framework of the Townes-Dailey method, as done recently by WHITE and DRAGO<sup>8</sup>, but we have not pursued this further.

This work was supported by a Grant-In-Aid from the U.S. Public Health Service, Research Grant GM 12082-05 from the National Institute of General Medical Sciences.

<sup>8</sup> W. D. WHITE and R. S. DRAGO, *J. Chem. Phys.* **52**, 4717 [1970].

## Pion Finite Size and Mesic Atoms

H. DANIEL

Physik-Department der Technischen Hochschule München  
Munich, Germany

(*Z. Naturforsch.* **25 a**, 1510—1511 [1970]; received 25 July 1970)

Contrary to the point-like muon the pion has a spatial extension. The effect of this finite size on levels of  $\pi$ -mesic atoms is estimated to be small but not necessarily negligible.

The levels of  $\pi$ -mesic atoms are usually treated with an optical potential<sup>1-4</sup>. Involved numerical computations are necessary to obtain fair agreement with the experimental data. The shape of the nucleus is taken from electromagnetic data, i. e. data of muonic atoms or electron scattering. Muon and electron are considered as point-like particles. The pion, on the other hand, has a spatial extension which has not yet been taken into account in previous work on  $\pi$ -mesic atoms. In this note the electromagnetic size of the pion<sup>5</sup>, with a radius equaling that of the proton<sup>6</sup>, will be taken as strong-interaction "size" of the pion.

In order to estimate the effect of the additional finite range of the  $\pi$ -nucleus interaction due to the pion size a simple model shall be used. The additional finite interaction range is taken into account by describing the

pion as a sphere of equivalent radius  $R_\pi$  uniformly charged with strong interaction of range zero. The nucleus is considered as a uniform sphere of radius  $R_N$  where  $R_N$  is the equivalent electromagnetic radius<sup>6</sup>. The probability of finding the pion center of mass at a (small) distance  $r$  from the center of mass of the nucleus is, for  $l > 0$ , approximately given by

$$P = a r^{2l+2}$$

where  $a$  is a constant and  $l$  is the orbital quantum number (for  $s$  states the distortion of the pion wave function by the nuclear potential is too large). If the center of mass of the pion is well inside the nucleus, at  $r \leq R_N - R_\pi$ , the pion finite size has almost no effect on the properties of the  $\pi$ -mesic level (the change in electromagnetic finite size effect is very small). The same is true for  $r \geq R_N + R_\pi$ . In the region of  $R_N - R_\pi < r < R_N + R_\pi$ , however, there is an effect which always yields a net increase in the  $\pi$ -nucleus interaction compared with the case  $R_\pi = 0$ . In the approximation  $R_\pi \ll R_N$  the effect of the relative interaction change is easily calculated and equals approximately the changes in nuclear shift and width:

$$\frac{\Delta V}{V_0} \approx \frac{\Delta S}{S_0} \approx \frac{\Delta I}{I_0} \approx \frac{2l+3}{8} \cdot \frac{R_\pi}{R_N} \quad (1)$$

<sup>1</sup> M. ERICSON and T. E. O. ERICSON, *Ann. Phys. (N. Y.)* **36**, 323 [1966].

<sup>2</sup> G. BACKENSTOSS, S. CHARALAMBUS, H. DANIEL, H. KOCH, M. KRELL, G. POELZ, H. SCHMITT, and L. TAUSCHER, *Physics of the one- and two-electron atoms*, p. 479, North-Holland Publ. Comp., Amsterdam 1969; CERN-Heidelberg-Karlsruhe-Munich-group, to be published.

<sup>3</sup> M. KRELL and T. E. O. ERICSON, *Nucl. Phys. B* **11**, 521 [1969].

<sup>4</sup> D. A. JENKINS, R. J. POWERS, and A. R. KUNSELMAN, *Phys. Rev. C* **1**, 2050 [1970].

<sup>5</sup> C. MISTRETTA, D. IMRIE, J. A. APPEL, R. BUDNITZ, L. CARROLL, M. GOTEIN, K. HANSON, and R. WILSON, *Phys. Rev. Letters* **20**, 1523 [1968].

<sup>6</sup> H. R. COLLARD, L. R. ELTON, and R. HOFSTADTER, *Landolt-Börnstein, New Series, I, Vol. 1, Nuclear Radii*, Springer-Verlag, Berlin 1967.

where  $\Delta V = V_t - V_0$  is the difference in the interaction potential  $V_t$  with finite  $R_\pi$  and  $V_0$  with vanishing  $R_\pi$ , and correspondingly are  $\Delta S/S_0$  and  $\Delta \Gamma/\Gamma_0$  the relative changes in the nuclear level shift and width, respectively.

The corrections  $\Delta S/S_0$  and  $\Delta \Gamma/\Gamma_0$ , Eq. (1), turn out to be fairly small (e. g. 13 per cent in the case of the 2p level of Mn with  $R_\pi = 1.03$  f and  $R_N = 4.80$  f).

Moreover they do not very strongly depend on the individual levels if levels with observed shifts and widths<sup>2-4</sup> are considered. Hence they may be neglected as long as one treats the optical-model parameters as adjustable numbers only. For precise work, however, the pion finite size has to be properly taken into account. The corrections Eq. (1) will then probably not be accurate enough.

## Stabilisation der Emission eines Riesenimpuls-lasers gegen Kurzzeitschwankungen durch eine nichtlineare Resonatorämpfung

G. ZEIDLER

Forschungslaboratorien der Siemens AG, München

(Z. Naturforsch. 25 a, 1511–1512 [1970]; eingegangen am 31. Juli 1970)

Die bei Riesenimpuls Lasern auftretenden Kurzzeitschwankungen im Subnanosekundenbereich werden mit Hilfe einer in den Resonator eingebrachten Farbstoffzelle mit Zwei-Photonenabsorption herausgedämpft, so daß ein glatter Zeitverlauf der Emission entsteht.

Bringt man ein nichtlineares optisches Bauteil, dessen Transmission mit steigender Lichtleistung sinkt, in einen Laserresonator, so wird dadurch der Zeitverlauf der Emission wesentlich geändert. Bisher wurde mit dieser Methode einerseits eine teilweise Stabilisation der Relaxationsschwingungen „Spikes“ von Festkörperlaser erreicht<sup>1</sup>, andererseits konnten damit Riesenimpulse wesentlich in ihrer Dauer verlängert werden<sup>2-5</sup>.

In dieser Arbeit wird nachgewiesen, daß mit dieser Methode auch die im Subnanosekundenbereich auftretenden Kurzzeitschwankungen in der Emission von Riesenimpuls Lasern verhindert werden können und somit ein glatter Zeitverlauf erreicht wird.

Bei Festkörperriesenimpuls Lasern ohne Modenselektion sind in der Emission Kurzzeitschwankungen beobachtbar, die z. Tl. einen chaotischen Zeitverlauf aufweisen<sup>6,7</sup>, z. Tl. auf Grund einer Selbstsynchronisation der Phasen der einzelnen Moden aus einer Impulsfolge mit der Resonatorumlaufzeit als Periodendauer bestehen<sup>8,9</sup>. Wir haben diese Subnanosekundenstruktur bei YAG:Nd<sup>3+</sup>-Riesenimpuls Lasern analysiert und deren Beeinflussbarkeit durch optische Resonatorbauteile mit nichtlinearer Übertragungscharakteristik untersucht. Bekanntlich werden durch sättigbare Absorber mit kurzer Relaxationszeit die Resonatormoden miteinander ver-

koppelt, die Entstehung einer Subnanosekundenstruktur wird begünstigt<sup>9</sup>. Dies ist plausibel, da diese sättigbaren Absorptionszellen auf Grund ihres nichtlinearen Transmissionsverhaltens (Amplitudenexpansion) kurze Impulsspitzen weniger stark dämpfen als breite und niedrige Impulse gleicher Energie, so daß sich im Resonator bevorzugt eine inhomogene Quantenverteilung ausbildet, die sich mit jedem Umlauf weiter verschärft und so zu der für Modenkopplung typischen Emissionsform führt. Dieses Verhalten wurde von uns bei YAG:Nd<sup>3+</sup>-Lasern mit dem Farbstoff Eastman Solution 9740 nachgeprüft.

Umgekehrt ist zu erwarten, daß ein nichtlineares Glied im Resonator mit Begrenzereigenschaft (Amplitudenkompression) die Kurzzeitstruktur unterdrückt und zu einem glatten Zeitverlauf führt.

Optische Übertragungsglieder dieser Art haben bei höherer Spitzenleistung eine größere Dämpfung als bei niedrigeren Leistungspegeln, so daß im Resonator lange, niedrige Impulse bevorzugt werden und Kurzzeitschwankungen mit überhöhter Spitzenleistung bei jedem Umlauf im optischen Resonator abgeflacht werden, was einer Verschmälerung des Emissionsspektrums entspricht. In unseren Experimenten benutzten wir als Begrenzer organische Farbstofflösungen mit 2-Photonenabsorption bei  $\lambda = 1,06 \mu\text{m}$ , insbesondere Rhodamin B in Äthanol oder in Plexiglas. Der Riesenimpuls Laser wurde wie in<sup>10</sup> mit einer Folgefrequenz von 50 Hz betrieben und die Emission mit einer Photodiode und einem schnellen Oszillograph mit einer Gesamtanstiegszeit von 0,5 ns beobachtet. Die durch Selbstsynchronisation der einzelnen Moden spontan auftretende Kurzzeitstruktur (Abb. 1 a) wird durch die 2-Photonenabsorption, abhängig von der Farbstoffkonzentration verhindert (Abb. 1 b, c), die Emission wird stabilisiert, wobei die Impulsenergie nur geringfügig abnimmt. Bei weiter erhöhter Farbstoffkonzentration wurde eine Verlängerung der Riesenimpulse mit einer Verminderung der Emissionsenergie beobachtet. Bei den Experimenten wurde darauf geachtet, daß die keilige Farbstoff-

Sonderdruckanforderungen an Dr. G. ZEIDLER, Siemens AG, Zentrale Forschung und Entwicklung FL 82, D-8000 München 25, Postfach 700.

<sup>1</sup> R. H. PANTELL u. J. WARSZAWSKI, Appl. Phys. Letters 11, 213 [1967].

<sup>2</sup> J. SCHWARTZ, C. S. NAIMAN u. R. K. CHANG, Appl. Phys. Letters 11, 242 [1967].

<sup>3</sup> V. A. ALESHKEVICH, V. V. ARSENEV, V. S. DNEPROVSKII u. D. N. KLYSHKO, JETP Letters 9, 123 [1969].

<sup>4</sup> L. M. LISITSYN, JETP Letters 9, 165 [1969].

<sup>5</sup> A. HORDVIK, IEEE J. QE-6, 199 [1970].

<sup>6</sup> V. S. LETOKHOV, Sov. Phys. JETP 28, 1026 [1969].

<sup>7</sup> A. A. GRÜTTER, H. P. WEBER u. R. DÄNDLICKER, Phys. Rev. 185, 629 [1969].

<sup>8</sup> H. W. MOCKER u. R. J. COLLINS, Appl. Phys. Letters 7, 270 [1965].

<sup>9</sup> A. J. DE MARIA, D. A. STETSER u. H. HEYNAU, Appl. Phys. Letters 8, 174 [1966].

<sup>10</sup> U. DESERNO u. G. ZEIDLER, MOGA 1968 in Hamburg und Nachrichtentechn. Fachberichte 35, 663 [1968].

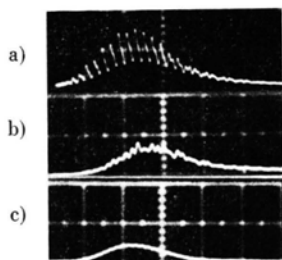


Abb. 1. Dämpfung der Mikrostruktur eines Nd-Riesenimpuls-lasers mit Hilfe der 2-Photonenabsorption. 5 ns/Einheit. a) Resonator ohne Zusatz, b) etwa  $0,02 \text{ mg/cm}^3$  Rhodamin B in Äthanollösung im Resonator, c)  $0,05 \text{ mg/cm}^3$  Rhodamin B. Küvettenlänge: 1 cm.

zelle um mehr als  $5^\circ$  gegen die Resonatorachse geneigt war, so daß kein Einfluß auf das Modenspektrum durch

Interferenz auftreten konnte. Die Verstärkung pro Umlauf war größer als 10 dB, so daß die Verluste der vergüteten Farbstoffzellen sich nicht auf die Ausgangsleistung auswirkten. Die Strahlungsdichte im Resonator lag zwischen 10 und  $20 \text{ MW/cm}^2$ , bei höheren Dichten wurden Zerstörungen des Farbstoffes, besonders in Plexiglas, beobachtet.

Unsere Messungen zeigten, daß das Kurzzeitverhalten von YAG:Nd<sup>3+</sup>-Riesenimpuls Lasern wesentlich durch Nichtlinearitäten im Resonator beeinflussbar ist. Da ohne zusätzliche optische nichtlineare Bauteile im Laserresonator eine spontane Selbstsynchronisation der Moden zu beobachten ist, kann angenommen werden, daß YAG-Laser im Bereich hoher Verstärkung selbst ein nichtlineares Verhalten entsprechend einer Amplitudenexpansionskennlinie aufweisen, das durch ein zusätzliches Kompressionsglied kompensiert werden kann.

## Wellenlänge und Energie der Lichtimpulse von Flüssigkeitslasern mit Blitzlampenerregung

I. KETSKEMÉTY, I. SZALMA, L. KOZMA und B. RÁCZ

Institut für Experimentalphysik der Universität Szeged  
Szeged, Ungarn

(Z. Naturforsch. **25 a**, 1512–1513 [1970]; eingegangen am 21. April 1970)

Die Mitteilungen über die erzwungene Emission von unmittelbar mit Blitzlampen erregten Farbstofflösungen enthalten nur spärliche Angaben<sup>1</sup> über die Abhängigkeit der Wellenlänge und der Energie der Laserblitze von der Farbstoffkonzentration. Die Verfasser untersuchten dieses Problem mit folgender Einrichtung. Die Laserküvette bestand aus einem 9 cm langen und 0,5 cm weiten Glasrohr von 0,3 cm Wandstärke mit optischer Anpassung der 0,4 cm dicken Endplatten des

Rohres. Aus der Mantelfläche der Küvette ragten 0,1 cm weite Röhrchen hervor, teils zum Einfüllen der Flüssigkeiten, teils um die bei der Erregung in der Flüssigkeit auftretende Stoßwelle zu dämpfen. Als pumpende Lichtquelle diente eine Blitzlampe Typ IFP 1200, die mit der Küvette parallel und davon 0,5 cm entfernt angebracht war. Lampe und Küvette waren mit einer reflektierenden Silberfolie umwickelt. Die Lampe wurde von einer auf 2250 V aufgeladenen Kondensatorbatterie von  $100 \mu\text{F}$  Kapazität gespeist, und das Aufblitzen durch einen Zündimpuls von 10 000 V hervorgerufen. Der Resonatorenhohlraum war 40 cm lang; der Reflexionskoeffizient beider Spiegel betrug 99,5%.

Die für Äthylalkohol-Lösungen von Rhodamin 6 G erhaltenen Versuchsergebnisse sind in den Abb. 1 und 2 dargestellt. Die Abhängigkeit der Wellenlänge des La-

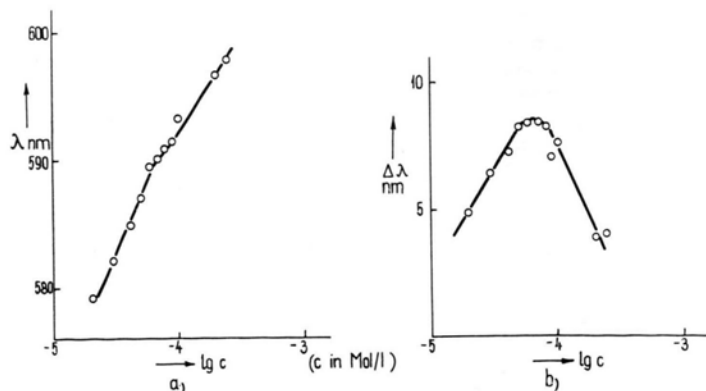


Abb. 1.

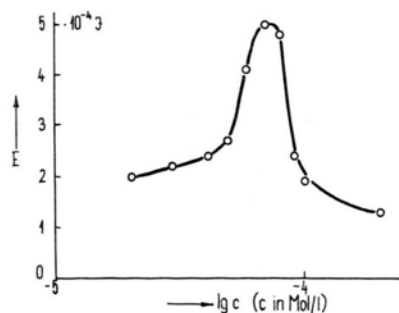


Abb. 2.

Sonderdruckanforderungen an Prof. Dr. I. KETSKEMÉTY, Institutum Physicum Experimentale, Universitatis Szegedien-sis de József Attila nominatae, Szeged (Ungarn), Dóm tér 9.

<sup>1</sup> P. P. SOROKIN, J. R. LANKARD, V. L. MORUZZI u. E. C. HAMMOND, J. Chem. Phys. **48**, 4726 [1968]. — B. I. STEPANOW

u. A. N. RUBINOW, Uspehi Fiz. Nauk **95**, 45 [1968]. — M. BASS, T. F. DEUTSCH u. M. J. WEBER, Appl. Phys. Letters **13**, 120 [1968]. — P. BIED-CHASRETON, M. BOITEUX, P. FLAMANT, G. LEVI, Y. MEYER u. O. DE WITTE, C. R. Acad. Sci. Paris B. (France) **268**, 1377 [1969].

serblitzes von der Farbstoffkonzentration zeigt Abb. 1 a, die spektrale Bandbreite des Blitzes ist in Abb. 1 b dargestellt. Zur Aufnahme der Spektren wurde ein Spektrograph Typ DFS-8 angewandt, dessen lineare Dispersion  $6 \text{ \AA/mm}$  beträgt. Zur Messung der Energie des Blitzes – siehe Abb. 2 – wurde das in <sup>2</sup> beschriebene Mikrokalorimeter verwendet. (Da die Pumpener-

gie bei den Versuchen immer dieselbe war, ist  $E$  in Abb. 2 der Laserausbeute proportional.) Aus der Abb. ist ersichtlich, daß die Wellenlänge der Laseremission durch Änderung der Farbstoffkonzentration in einem Spektralintervall von etwa 20 nm geändert werden kann. Im Falle einer der maximalen Laserenergie entsprechenden Farbstoffkonzentration von etwa  $c = 7 \cdot 10^{-5} \text{ Mol/l}$  weist auch die spektrale Bandbreite des Laserblitzes einen maximalen Wert auf.

Ausführlicheres wird in den Acta Phys. et Chem., Szeged, mitgeteilt.

<sup>2</sup> J. DOMBI, L. GÁTI, I. KETSKE MÉTY, I. SZALMA u. L. VIZE, Acta Phys. Chem. Szeged **16** [1970], im Erscheinen.

## Die Rotation der $\gamma\gamma$ -Winkelkorrelation der Kaskaden (570–797) keV, (570–797–605) keV und (797–605) keV von $\text{Ba}^{134}$ in einem äußeren Magnetfeld

H. BEER

Institut für Kernphysik der Technischen Universität Berlin  
(Z. Naturforsch. **25 a**, 1513–1514 [1970]; eingegangen am 25. Juli 1970)

*The Rotation of the  $\gamma\gamma$  Angular Correlation of the Cascades (570–797) keV, (570–797–605) keV and (797–605) keV of  $\text{Ba}^{134}$  in an External Magnetic Field*

The over all  $\gamma\gamma$  angular correlation of the cascades (570–797) keV, (570–797–605) keV and (797–605) keV in  $\text{Ba}^{134}$  was perturbed by an external magnetic field of 41.4 kG perpendicular to the directions of observation of the quanta. The rotation of the angular correlation was found to be

$$\omega \tau = 0.05 \pm 0.03.$$

This result could be due to the  $2^+$  605 keV or to  $4^+$  1400 keV energy level or to both level with measurable portion. The aspects of these alternatives are discussed.

### I. Einleitung

Der Zerfall von  $\text{Cs}^{134}$  zu angeregten Zuständen von  $\text{Ba}^{134}$  erfolgt durch  $\beta^-$ -Emission. Das  $2^+$  605 keV und das  $4^+$  1400 keV-Niveau werden von KISSLINGER und SORENSSEN<sup>1</sup> als Vibrationszustände gedeutet. Die Halbwertszeit des 605 keV-Niveaus wurde von ALKHAZOV et al.<sup>2</sup> zu 5 ps gemessen, die Halbwertszeit des 1400 keV-Niveaus von HOFMANN, WALTER und WEITSCH<sup>3</sup> zu  $T_{1/2} \leq 30 \text{ ps}$  abgeschätzt. Für die Identifikation der angeregten Zustände von  $\text{Ba}^{134}$  als Einteilchenzustände oder kollektive Anregungen ist es sicherlich interessant, magnetische Momente dieser Niveaus zu kennen.

### II. Die Meßmethode

Die Winkelkorrelation der Kaskaden (570–797) keV, (570–797–605) keV und (797–605) keV wurde von STEWART et al.<sup>4</sup> gemessen. Durch Anlegen

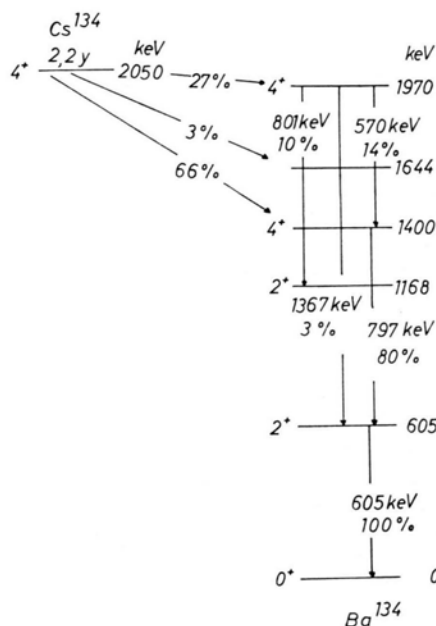


Abb. 1. Vereinfachtes Zerfallsschema von  $\text{Cs}^{134}$ .

eines äußeren Magnetfeldes senkrecht zu den Beobachtungsrichtungen der  $\gamma$ -Quanten der Kaskaden wurde die Winkelkorrelation gestört. Die Störung äußert sich in einer Abschwächung und Rotation der Winkelkorrelation. Anschaulich bedeutet dies eine Präzessionsbewegung (mit der Larmor-Frequenz  $\omega$ ) der Atomkerne im Zwischenzustand der Kaskade um die Feldrichtung infolge der Wechselwirkung des äußeren Magnetfeldes mit dem magnetischen Moment des Kerns. Für Niveaus mit der Lebensdauer von ungefähr  $10^{-10} \text{ s}$  und kleiner wird vor allem die von MANING und ROGERS<sup>5</sup> beschriebene Methode angewandt. Für die durch ein äußeres

Sonderdruckanforderungen an Dr. H. BEER, D-1000 Berlin 33, Lassenstraße 9 a.

<sup>1</sup> L. S. KISSLINGER u. R. A. SORENSSEN, Rev. Mod. Phys. **35**, 853 [1963].

<sup>2</sup> D. G. ALKHAZOV, D. S. ANDREEV, V. D. VASIL'EV, YU. P. GANGRSKII, I. KH. LEMBERG u. YU. I. UDALOV, Bull. Acad. Sci. USSR **27**, 1263 [1963].

<sup>3</sup> S. HOFMANN, H. K. WALTER u. A. WEITSCH, Z. Phys. **230**, 37 [1970].

<sup>4</sup> M. G. STEWART, R. P. SCHARENBERG u. M. L. WIEDENBECK, Phys. Rev. **99**, 691 [1955].

<sup>5</sup> G. MANING u. J. D. ROGERS, Nucl. Phys. **15**, 166 [1960].

Magnetfeld gestörte Winkelkorrelation gilt

$$W(\Theta, B_{\pm}) = \sum_{\nu} \frac{b_{\nu}}{\sqrt{1 + \nu \omega \tau}} \cos \nu(\Theta \pm \Delta \Theta)$$

$[B_{\pm} = \text{entgegengesetzte Feldrichtungen, } \Theta = \text{Winkel zwischen den Beobachtungsrichtungen, } \Delta \Theta = 1/\nu \tan^{-1}(\nu \omega \tau)^2]$ .

Man bildet die Größe

$$R = 2 \frac{W(135^{\circ}, B_{+}) - W(135^{\circ}, B_{-})}{W(135^{\circ}, B_{+}) + W(135^{\circ}, B_{-})}$$

Für  $\omega \tau \ll 1$  ergibt sich

$$R = \pm 4 b_2 \omega \tau (1 - b_4)^{-1}.$$

### III. Das Meßergebnis

Die Koinzidenzanordnung wurde drehbar an einem Elektromagneten<sup>6</sup> mit konischen Polschuhen angebracht. Die Detektoren  $[1,5'' \phi \times 2'' \text{ NaJ(Tl)-Kristalle, Plexiglaslichtleiter und 56 AVP Photomultiplier}]$  bildeten einen Winkel von  $135^{\circ}$ . Gegen das Streufeld des Magneten wurden die Multiplier durch Mu-Metall und Eisen abgeschirmt. Die Auflösungszeit der Koinzidenzschaltung betrug 50 ns. Als radioaktive Quelle diente eine wäßrige Lösung von  $40 \mu\text{Ci Cs}^{134}$ -Chlorid in einem kleinen zylinderförmigen, verschlossenen Plexiglastöpfchen (Innendurchmesser 3 mm, Höhe 4 mm und Wandstärke 1 mm). Das radioaktive Präparat wurde mit einem Kreutzischchen genau auf das Zentrum der Apparatur im Magnetfeld eingestellt. Das Magnetfeld am Ort der Quelle wurde mit einer Widerstandsfeldsonde<sup>7</sup> (Feldplatte) bestimmt. Es wurden 41,4 kG erzeugt. Die Zählung der Koinzidenzen wurde alle 10 Minuten unterbrochen und die Feldrichtung durch Umpolen des Magneten umgekehrt. In jeder Feldrichtung wurden insgesamt 500 000 Koinzidenzen registriert. Zu Test-

zwecken wurden die Energiekanäle der Detektoren vertauscht, was einem Übergang zum Komplementärwinkel in der Winkelkorrelation gleichkommt. Für  $R$  ist damit eine Vorzeichenumkehr verbunden. Dadurch werden Streufeldeffekte der Photomultiplier, die durch die Winkeländerung nicht beeinflußt werden, aufgedeckt. Mit der neuen Einstellung wurde die gleiche Anzahl von Koinzidenzen registriert und die Größe  $R$  gebildet. Über beide  $R$ -Werte wurde gemittelt. Es ergab sich

$$\bar{R} = 0,0107 \pm 0,0014.$$

Für  $R = 4 b_2 \omega \tau$  bei  $\omega \tau \ll 1$  und unter Vernachlässigung von  $b_4$ , bei einer Feldstärke von 41,4 kG ist damit

$$\omega \tau = 0,05 \pm 0,03.$$

### IV. Diskussion des Meßergebnisses

Die gemessene Rotation könnte dem 605 keV- oder dem 1400 keV-Niveau oder beiden Niveaus mit meßbaren Anteilen zugeschrieben werden. Mit der Halbwertszeit 5 ps und unter der Annahme einer oberen Grenze für den  $g$ -Faktor des 605 keV-Niveaus (Zweitteilchenanregung der Protonenschale  $d_{5/2}$  [Konfiguration  $(d_{5/2}, d_{5/2})_2$ ]) ergibt unter Zugrundelegung von Schmidt-Werten einen  $g$ -Faktor von  $+1,91$  wäre die Rotation  $\omega \tau$  bei 41,4 kG Magnetfeldstärke nur 0,003. Da die gemessene Rotation viel größer ist, müßte man sie auf den Einfluß des 1400 keV-Niveaus zurückführen. Die Abschätzung der Halbwertszeit des 1400 keV-Niveaus von HOFMANN, WALTER und WEITSCH<sup>3</sup> läßt sich mit der gemessenen Rotation vereinbaren.

Herrn Prof. Dr. H. BUCKA sei für zahlreiche klärende Diskussionen und für sein förderndes Interesse an dieser Arbeit gedankt. Die Deutsche Forschungsgemeinschaft stellte in dankenswerter Weise wertvolle Meßgeräte zur Verfügung.

<sup>6</sup> Typ B-E 40 A5 Fa. Bruker-Physik, Karlsruhe.

<sup>7</sup> Fa. Siemens, Typ FP 28 D 470.