

## NOTIZEN

# Interaction of 14.0 MeV-Neutrons with $^{12}\text{C}$ in Stilbene

H.-U. FABIAN

Institut für Reine und Angewandte Kernphysik der  
Universität Kiel (Direktor: Prof. Dr. E. BAGGE)

(Z. Naturforsch. **26 a**, 317—319 [1971]; received 30 December 1970)

The pulse height spectrum of all heavy charged particles induced by 14.0 MeV neutrons in a  $1'' \times 1''$  stilbene scintillator was measured using a pulse shape discriminator and the associated particle technique. The proton pulse spectrum was subtracted and the remaining alpha-pulse distribution is shown in a diagram. The sum of the cross sections for the reactions  $^{12}\text{C}(n, n') 3\alpha$  and  $^{12}\text{C}(n, \alpha)^9\text{Be}$  was determined to be  $\sigma_c = (260 \pm 20) \text{ mb}$ .

A widely used method in fast neutron spectroscopy is based upon the unfolding of the proton recoil pulse height spectrum which is induced in organic scintillators as e.g. in stilbene, NE 213 etc. The main problems giving rise to erroneous results are

- 1) Non-isotropy of the n-p differential elastic cross section at energies  $> 12 \text{ MeV}$ ,
- 2) edge effects in small and
- 3) multiple scattering in large scintillators,
- 4) non-linearity of the light-energy relation for heavy charged particles,
- 5) nonelastic neutron interactions with the carbon atoms of the scintillator.

Much effort has been devoted to the minimizing of all these effects<sup>1-5</sup>. For neutron energies  $< 14 \text{ MeV}$  the optimum scintillator dimensions with respect to items 2) and 3) are  $1''$  diameter by  $1''$  height for stilbene and about  $2'' \times 2''$  for NE 213.

The non-elastic interaction of fast neutrons with the carbon atoms of organic scintillators has been studied by several authors<sup>6-10</sup>. The two main reactions occurring are



In the first mode of disintegration only one  $\alpha$ -particle is emitted in those cases where the  $^9\text{Be}$  nucleus is left in its ground state. If it is excited to one of its higher states, it disintegrates into a neutron and two  $\alpha$ -particles, simulating a reaction of type b)<sup>22, 24</sup>. Both reaction a) and b) have been studied in detail with nuclear emulsions, cloud chambers and semiconductor detectors<sup>11-24</sup>. For a) the differential cross section curves found are rather contradictory and for b) the branching ratios concerning the disintegration of the various  $^{12}\text{C}$ -levels are not known very well.

Figure 1 shows a pulse height spectrum induced by 14.0 MeV neutrons in a  $1'' \times 1''$  stilbene scintillator. It was taken in

- 1) coincidence with the  $\alpha$ -particles from the neutron-generating reaction  $T(d, n)\alpha$  and
- 2) coincidence with the output pulse of a pulse shape discriminator which eliminated electron pulses.

This triple-coincidence technique has the advantage that only pulses from 14 MeV neutrons are analyzed and that all gamma-induced pulses are discriminated including those generated by pure inelastic neutron scattering within the scintillator. By this means the proton background from lower energy neutrons is greatly reduced.

The measured distribution shows a nearly ideal proton pulse height distribution-necessarily not rectangular because of the nonlinear light curve-superimpo-

Reprints request to Dipl.-Phys. H.-U. FABIAN, Institut für Reine und Angewandte Kernphysik der Universität Kiel, Außenstelle Stohl, D-2300 Kiel, Olshausenstr. 40/60, Gebäude 32.

<sup>1</sup> H. W. BROEK and C. E. ANDERSON, Rev. Sci. Instrum. **31**, 1063 [1960].

<sup>2</sup> J. E. HARDY, Rev. Sci. Instrum. **29**, 705 [1958].

<sup>3</sup> A. BRODSKY, AEC-Report TID-13075 [1961].

<sup>4</sup> M. BORMANN and B. BRENNEMANN, Report EUR 1815.e 246 [1964].

<sup>5</sup> B. BRÖCKER and H.-U. FABIAN, Atomkernenergie **14**—79, 408—416 [1969].

<sup>6</sup> R. BATCHELOR, W. B. GILBOY et al., Nucl. Instr. Meth. **13**, 70 [1961].

<sup>7</sup> F. A. JOHNSON, Can. J. Phys. **41**, 793 [1963].

<sup>8</sup> B. BRUNFELTER, J. KOCKUM et al., Proc. IAEA Conf. Neutron Dosimetry 2, Vienna 1963, S. 351.

<sup>9</sup> A. HUCK, G. WALTER et al., J. Physique Paris **27**, Suppl., C1-88 [1966].

<sup>10</sup> D. KOPSCH and S. CIERJACKS, Nucl. Instr. Meth. **54**, 277 [1967].

<sup>11</sup> E. R. GRAVES and R. W. DAVIS, Phys. Rev. **97**, 1205 [1955].

<sup>12</sup> R. A. AL-KITAL and R. A. PECK, Phys. Rev. **130**, 1500 [1963].

<sup>13</sup> M. L. CHATTERJEE and B. SEN, Nucl. Phys. **51**, 583 [1964].

<sup>14</sup> H. BRENDLE, M. MÖRIKE et al., Z. Naturforsch. **23 a**, 1229 [1968].

<sup>15</sup> H. KITAZAWA and N. YAMAMURO, J. Phys. Soc. Japan **26**, 600 [1969].

<sup>16</sup> YUIN-CHI HSU et al., Chin. J. Phys. **7**, 1 [1969].

<sup>17</sup> L. L. GREEN and W. M. GIBSON, Proc. Phys. Soc. London A **62**, 296 [1948].

<sup>18</sup> G. M. FRYE and L. ROSEN et al., Phys. Rev. **99**, 1375 [1955].

<sup>19</sup> S. S. VASILIEV and V. V. KOMAROW, Sov. Phys. JETP **6**, 1016 [1957].

<sup>20</sup> Y. TSUNEOKA, J. Phys. Soc. Japan **14**, 869 [1959].

<sup>21</sup> T. A. BRINKLEY, B. A. ROBSON et al., Proc. Phys. Soc. London **84**, 201 [1964].

<sup>22</sup> J. MÖSNER, G. SCHMIDT et al., Nucl. Phys. **75**, 113 [1966].

<sup>23</sup> G. A. GRIN, B. VAUCHER et al., Helv. Phys. Acta **42**, 990 [1969].

<sup>24</sup> J. MÖSNER, G. SCHMIDT et al., Nucl. Phys. **64**, 169 [1965].

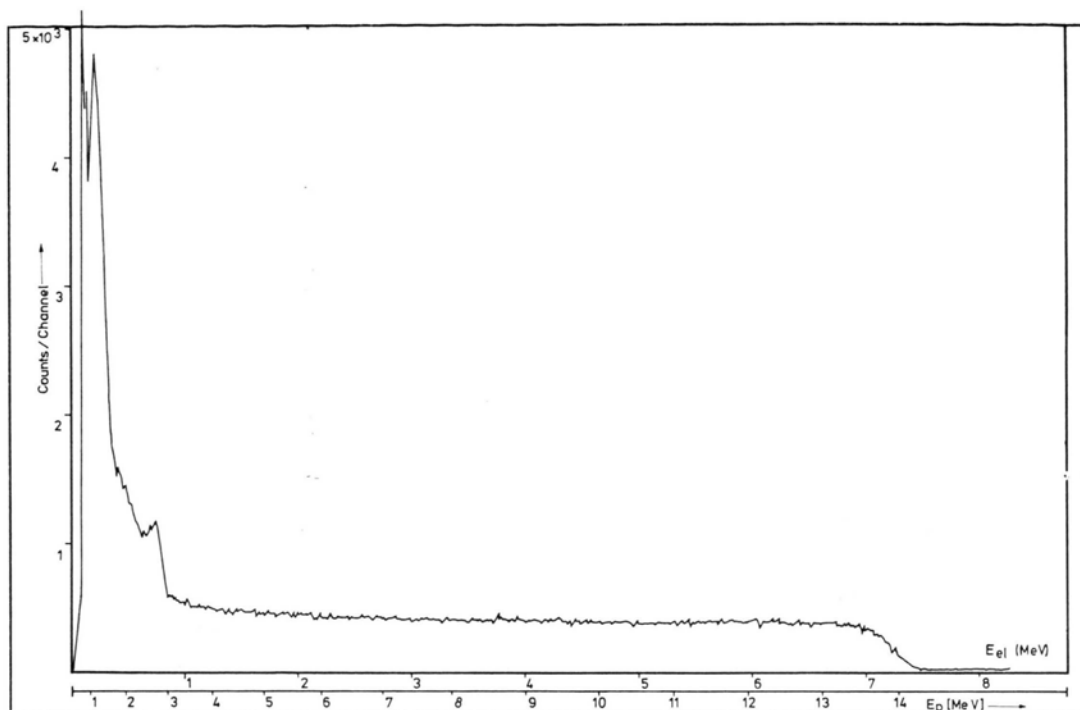


Fig. 1. Pulse height spectrum of the recoil protons and  $\alpha$ -particles induced by 14.0 MeV neutrons in a  $1'' \times 1''$  stilbene scintillator. The spectrum was taken in coincidence with the  $\alpha$ -particles of the reaction  $T(d, n)\alpha$  and the output pulse of the pulse shape discriminator. Calibration: 1 MeV  $E_{el} \cong 61.75$  Channels.

sed by the sharply rising  $\alpha$ -distribution at an equivalent proton energy of about 3.0 MeV.

In order to obtain the pure  $\alpha$ -spectrum by subtraction of the proton underlay, the following procedure was applied:

The proton light curve may be empirically written as:

$$L_p = c_1 E_p^{c_2} \quad (\text{in units of 1 MeV-electron pulse height})$$

with  $c_1 = 0.15$ ,  $c_2 = 1.48$  (see <sup>3</sup>).

Then the proton pulse height spectrum is

$$\frac{dN}{dL_p} = \frac{dN}{dE_p} \frac{dE_p}{dL_p} = 0.675 \frac{(6.67 L_p)^{0.675}}{L_p} \cdot \frac{dN}{dE_p} \quad (1)$$

The unknown term  $dN/dE_p$  is determined from (1) as an average value for a portion of the pulse spectrum which contains no  $\alpha$ -particle pulses. This value is then in turn inserted in (1) and the pulse spectrum computed for the lower channels.

Figure 2 shows the  $\alpha$ -particle spectrum obtained by this method. It was taken with a higher amplifier gain by a second pulse height analyzer at the same time as that shown in Fig. 1.

The separation of the  $\alpha$ -particle distribution allows one to determine the sum of the cross sections for the reactions a) and b). But it must be emphasized here that it is impossible to obtain these cross sections separately by scintillator measurements. The reason is that according to some authors the differential cross section for reaction a) is peaked backward in the

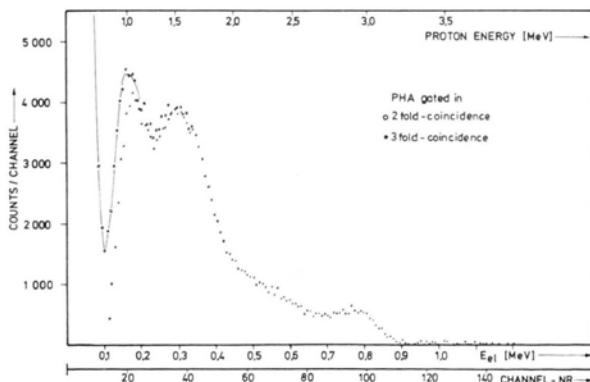


Fig. 2. Pulse height spectrum of all  $\alpha$ -particles induced by 14.0 MeV neutrons in a  $1'' \times 1''$  stilbene scintillator. The spectrum was obtained after subtraction of the proton recoil distribution.

CM-system, so that a considerable contribution of  $\alpha$ -particle pulses are mixed with the pulses due to the 3  $\alpha$ -disintegrations <sup>15, 16</sup>.

The cross section sum may be determined without knowledge of the absolute neutron flux, but only from the ratio of  $\alpha$ -pulses to that of the recoil protons.

Let  $N_\alpha$  be the total number of induced  $\alpha$ -particles (sum of  $\alpha$ -counts in the 3-fold-coincidence gated spectrum),  $N_{pt}$  the total number of recoil protons produced

in the scintillator,  $E_{p1}$  and  $E_{p2}$  some two energy values within the flat portion of the pulse distribution and  $N_{p1}$  the sum of counts within this portion, then we have:

$$\frac{N_{\alpha}}{N_{pt}} = \frac{n_c \sigma_c}{n_H \sigma_H} \text{ with } \frac{n_H}{n_C} = 0.8569 \text{ for stilbene}$$

and  $\sigma_H = 0.690$  b ( $E_n = 14$  MeV).

The proton number is computed from the relation

$$N_{pt} = \frac{14.0}{E_{p2} - E_{p1}} N_{p1}. \quad (2)$$

The value for  $\sigma_C$  found in this manner is  $(260 \pm 20)$  mb. It was obtained as an average from about 10 spectra including those taken with a  $2'' \times 2''$  NE 213 scintillator.

<sup>25</sup> F. X. HAAS and J. T. MCCARTHY, Nucl. Instr. Meth. **50**, 340 [1967].

The error of about 8% is mainly systematic. It is dependent on the form of the light curve in the proton energy range between  $E_{p1}$  and  $E_{p2}$ , because it is implicitly used in Eq. (2), and on the electronic threshold of the PSD-circuit, cutting off the  $\alpha$ -spectrum.

The light curves used by the several authors differ mainly at lower and higher energies from one another <sup>1, 3, 25, 26</sup>. The influence of the PSD threshold is evident from Fig. 2: It is slightly above the first minimum in the spectrum, where the carbon recoil pulses mix with the  $\alpha$ -pulses. So it is estimated that the value for  $\sigma_C$  rather tends to be somewhat larger than that given above. If one assumes an average cross section of 73 mb for the reaction  $^{12}\text{C}(n, \alpha_0)^9\text{Be}$  (mean value from <sup>11-15</sup>) one obtains  $\sigma(n, n') 3 \alpha = (190 \pm 20)$  mb.

<sup>26</sup> M. M. WASSON, AERE-Report 4269, Harwell 1963.

## Relative Line Intensities in the Lyman Bands of HD and H<sub>2</sub>

K. H. BECKER and E. H. FINK

Institut für Physikal. Chemie der Universität Bonn, Germany

(Z. Naturforsch. **26 a**, 319–320 [1971]; received 20 January 1971)

Relative intensities of  $P(J'+1)$  and  $R(J'-1)$  lines have been measured in the  $(v'=3, v'')$  progressions of the Lyman bands of HD and H<sub>2</sub>. The intensity ratios are in good agreement with previous experimental data and with the results of theoretical calculations which account for the centrifugal distortion.

The influence of vibration-rotation interaction on calculated Franck-Condon factors and transition probabilities of spectral lines of hydrogen molecules has recently been studied by several authors <sup>1-4</sup>. It was found that inclusion of the centrifugal potentials in the calculations is necessary for precise theoretical predictions. The results of such calculations were put to an experimental test by FINK, AKINS, and MOORE <sup>5</sup> who measured the relative intensities of  $P(J'+1)$  and  $R(J'-1)$  lines in three  $(v'=\text{const}, v'')$  progressions of the Lyman bands of HD, and compared the experimental line intensity ratios with theoretical data obtained from Franck-Condon factor calculations. Later ALLISON <sup>6</sup> compared the results of Fink et al. with more precise theoretical data obtained from calculations of the total transition probabilities of the corresponding lines. He found that all experimental values were slightly larger than the theoretical data. The present work was performed mainly to decide whether this

finding was accidental or a real effect. Due to a more sensitive detection system the accuracy of the measurements could be essentially increased. Therefore, part of the measurements of Fink et al. were repeated, and additional measurements were performed in the  $(v'=3, v'')$  Lyman band progression of H<sub>2</sub>.

A fluorescence set-up with an argon microwave lamp was used to excite HD and H<sub>2</sub> to the  $\text{HD}(B^1\Sigma_u^+; v'=3; J'=2)$  and  $\text{H}_2(B^1\Sigma_u^+; v'=3; J'=1)$  levels, respectively, through absorption of the 1066 Å argon resonance line <sup>7</sup>. The  $(v'=3, v'')$  fluorescence band progressions mainly consist of the  $P(3)-R(1)$  and  $P(2)-R(0)$  line pairs. The relative intensities of the lines were measured photoelectrically by means of a 1-m scanning monochromator (Hilger  $\alpha$  Watts type E 766) and a channeltron photon counter (Bendix type BX 762). For measurements below 1250 Å a sodium salicylate coated EMI 6255 SA photomultiplier was used. Peak heights as well as peak areas were measured to obtain the intensity ratios of the  $P(3)$  to  $R(1)$  and  $P(2)$  to  $R(0)$  lines for all bands which were not seriously overlapped by other emissions. In Tables 1 and 2 the results are compared with the previous experimental data and with the theoretical values obtained from calculated total transition probabilities of the HD and H<sub>2</sub> lines <sup>6, 8</sup>. In most of the HD bands the experimental error limits could be reduced. In the HD as well as in the H<sub>2</sub> bands the experimental results are in very good agreement with the theoretical data. In both cases no systematic difference between theoretical and experimental data is observed. Thus the present results prove that the relative line intensities of  $P(J'+1)$

<sup>1</sup> M. HALMANN and I. LAULICHT, J. Quant. Spectry. Radiative Transfer **8**, 935 [1968].

<sup>2</sup> D. VILLAREJO, R. STOCKBAUER, and M. INGRAM, Chem. Phys. Letters **2**, 11 [1968].

<sup>3</sup> D. VILLAREJO, R. STOCKBAUER, and M. INGRAM, J. Chem. Phys. **50**, 1754 [1969].

<sup>4</sup> L. WOLNIEWICZ, J. Chem. Phys. **51**, 5002 [1969].

<sup>5</sup> E. H. FINK, D. L. AKINS, and C. B. MOORE, Chem. Phys. Letters **4**, 283 [1969].

<sup>6</sup> A. C. ALLISON, J. Chem. Phys. **52**, 4909 [1970].

<sup>7</sup> E. H. FINK, D. L. AKINS, and C. B. MOORE, J. Chem. Phys. (to be published).

<sup>8</sup> K. H. BECKER, E. H. FINK, and A. C. ALLISON, J. Opt. Soc. Amer. (to be published in April 1971).

Table 1. Intensity ratios  $I[P(J'+1)]/I[R(J'-1)]$  for the ( $B^1\Sigma_u^+$ ;  $v'=3$ ;  $J'=2 \rightarrow X^1\Sigma_g^+$ ;  $v''$ ;  $J' \pm 1$ ) transition of HD.

| $v''$ | Calculated<br>Ref. <sup>6</sup> | Experimental<br>Ref. <sup>5</sup> | Experimental<br>This work |
|-------|---------------------------------|-----------------------------------|---------------------------|
| 1     | 1.53                            | $1.58 \pm 0.06$                   | $1.52 \pm 0.05$           |
| 2     | 1.42                            | $1.49 \pm 0.06$                   | $1.45 \pm 0.04$           |
| 3     | 0.74                            | $0.82 \pm 0.08$                   | $0.73 \pm 0.04$           |
| 4     | 1.69                            | $1.74 \pm 0.04$                   | $1.73 \pm 0.04$           |
| 5     | 1.44                            | $1.48 \pm 0.05$                   | $1.43 \pm 0.03$           |
| 6     | 0.85                            | $0.93 \pm 0.06$                   | $0.85 \pm 0.03$           |
| 7     | 1.78                            | $1.85 \pm 0.05$                   | $1.82 \pm 0.05$           |
| 8     | 1.44                            | $1.50 \pm 0.05$                   | $1.46 \pm 0.05$           |
| 9     | 0.79                            | $0.84 \pm 0.05$                   | $0.82 \pm 0.04$           |
| 10    | 1.85                            | $1.88 \pm 0.05$                   | $1.87 \pm 0.04$           |
| 11    | 1.52                            | $1.55 \pm 0.03$                   | $1.53 \pm 0.03$           |
| 12    | 1.32                            | $1.37 \pm 0.04$                   | $1.32 \pm 0.04$           |
| 13    | 0.99                            | $1.07 \pm 0.06$                   | $0.98 \pm 0.04$           |

and  $R(J'-1)$  lines in the Lyman bands of HD and  $H_2$  are well represented by calculated transition probabilities if effective potentials

$$V = V_0 + h^2 J(J+1)/(8\pi^2 \mu r^2)$$

Table 2. Intensity ratios  $I[P(J'+1)]/I[R(J'-1)]$  for the ( $B^1\Sigma_u^+$ ;  $v'=3$ ;  $J'=1 \rightarrow X^1\Sigma_g^+$ ;  $v''$ ;  $J' \pm 1$ ) transition of  $H_2$ .

| $v''$ | Calculated<br>Ref. <sup>8</sup> | Experimental    |
|-------|---------------------------------|-----------------|
| 1     | 2.00                            | $1.96 \pm 0.06$ |
| 2     | 1.82                            | $1.80 \pm 0.05$ |
| 4     | 2.03                            | $2.06 \pm 0.05$ |
| 5     | 1.73                            | $1.70 \pm 0.05$ |
| 6     | 2.58                            | $2.55 \pm 0.06$ |
| 8     | 1.49                            | $1.52 \pm 0.06$ |
| 9     | 2.40                            | $2.42 \pm 0.08$ |
| 10    | 2.01                            | $1.98 \pm 0.04$ |
| 11    | 1.76                            | $1.74 \pm 0.06$ |

are used in these calculations. At least for low rotational quantum numbers, no inclusion of second order correction terms in the effective potential seems to be necessary. Such a correction term was included in calculations of Franck-Condon factors for the NO  $\beta$ -bands by GENEROSA and HARRIS <sup>9</sup>.

<sup>9</sup> J. I. GENEROSA and R. A. HARRIS, J. Chem. Phys. **53**, 3147 [1970].

### Ein Mikrowellen-Mikrowellen-Doppelresonanzexperiment. Abtrennung der höherfrequenten Pumpe vom Detektor durch Verwendung gekreuzter Felder \*

U. ANDRESEN \*\* und H. D. RUDOLPH

Physikalisches Institut der Universität Freiburg i. Br.

(Z. Naturforsch. **26 a**, 320—322 [1971]; eingeg. am 31. Dezember 1970)

In a microwave double-resonance experiment involving three rotational levels of propylene oxide perpendicular polarization of the pump and signal radiation was employed to prevent the higher-frequency pump radiation (24 GHz) from reaching the signal detector (11 GHz). For this purpose the independent cut-off characteristics of the  $TE_{10}$  and  $TE_{01}$  waveguide mode were exploited which depend only on the broad or small-face waveguide dimension, respectively.

Wir haben a. a. O. <sup>1</sup> ein Mikrowellen-Mikrowellen-Doppelresonanzexperiment mit modulierter Pumpe <sup>2</sup> innerhalb eines 3-Niveausystems, bestehend aus drei Rotationsenergieniveaus des Moleküls Propylenoxyd, beschrieben, wobei unseres Wissens zum ersten Mal senkrecht zueinander polarisierte Pump- und Signalstrahlung in der Hohlleiterzelle verwendet wurde. Auch die nötige Theorie ist dort gegeben, auf die andersartigen Auswahlregeln wird verwiesen.

Sonderdruckanforderungen an Prof. Dr. H. D. RUDOLPH, Physikalisches Institut der Universität Freiburg, 78 Freiburg i. Br., Hermann-Herder-Str. 3.

\* Der wesentliche Inhalt dieser Arbeit wurde auf der FA-Sitzung Molekülphysik der DPG in Bad Nauheim, März 1969, von H. D. R. vorgetragen.

Ursprünglich war das Verfahren zu dem Zweck erdacht worden, ein leidiges Problem der Doppelresonanzspektroskopie auf möglichst einfache Art zu lösen, nämlich die starke Pumpstrahlung vom Detektor der schwachen Signalstrahlung auch in dem Falle wirksam fernzuhalten, in dem die Pumpstrahlung höhere Frequenz als die Signalstrahlung hat und sich daher ungehindert im Hohlleiter, der zum Detektor führt, ausbreiten kann, wenn Pumpe und Signal, wie sonst üblich, parallel zueinander polarisiert sind (beides  $TE_{10}$ -Wellen). Bei gekreuzten Feldern jedoch kann man die Tatsache, daß die Grenzwellenlängen der  $TE_{10}$ - und  $TE_{01}$ -Wellen prinzipiell voneinander unabhängig sind, zum gewünschten Zweck ausnützen. Es gilt für die durchgelassenen ( $\nu$ ) und Grenzfrequenzen ( $\nu_g$ ):

$$\nu(TE_{10}) \geq \nu_g(TE_{10}) = c/2a, \quad (1)$$

$$\nu(TE_{01}) \geq \nu_g(TE_{01}) = c/2b, \quad (2)$$

wobei  $c$  die Lichtgeschwindigkeit und  $a$  bzw.  $b$  üblicherweise die Länge der breiten bzw. schmalen Seite des Hohlleiterquerschnitts ist. Ersichtlich kann durch geeignete Abmessungen  $a$ ,  $b$  eines Hohlleiters über (1) und (2) getrennt verfügt werden, wobei schon ein ausreichend langes eingesetztes Hohlleiterstück den Zweck als Sperre erfüllen sollte.

\*\* Jetzige Anschrift: Institut für Physikalische Chemie, Abt. Chemische Physik, D-23 Kiel, Olshausenstraße 40—60.

<sup>1</sup> H. D. RUDOLPH, H. DREIZLER u. U. ANDRESEN, Z. Naturforsch. **26 a**, 233 [1971].

<sup>2</sup> R. C. WOODS III, A. M. RONN, E. BRIGHT WILSON JR., Rev. Sci. Instrum. **37**, 927 [1966].

Zur praktischen Prüfung dieser Überlegung haben wir wieder das obige 3-Niveausystem verwendet, jetzt aber Signalübergang  $\nu(1_{01} \rightarrow 1_{11}) = 11\,341,6\text{ MHz}^3$  und Pumpübergang  $\nu(0_{00} \rightarrow 1_{11}) = 23\,975,2\text{ MHz}^3$  gegenüber<sup>1</sup> vertauscht. Die drei beteiligten Niveaus sind nur bei gekreuzten Feldern durch Auswahlregeln verbunden, Abb. 1. Die K-Band-Pumpstrahlung war paral-

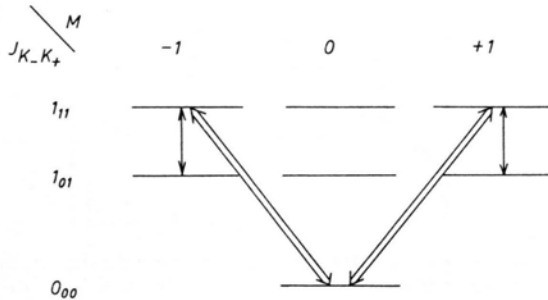


Abb. 1. Benutztes System aus drei Rotationsniveaus des Propylenoxyds. Quantisierungsachse  $\parallel$  zum E-Feld der Signalstrahlung ( $\uparrow$ ) und  $\perp$  zum E-Feld der Pumpstrahlung ( $\uparrow$ ) angenommen (o. E. d. A., s.<sup>1</sup>). Daher M-Auswahlregeln für Signal  $\Delta M=0$ , aber  $0 \leftrightarrow \pm 1$  bei  $\Delta J=0$ , für Pumpe  $\Delta M=\pm 1$ .

lel zur Breitseite  $a$  des X-Band-Hohlleiters polarisiert, in dem sich der Signaldetektor befand; bezogen auf diesen X-Band-Hohlleiter war also der Wellenmodus der Pumpe  $TE_{01}$ , des Signals  $TE_{10}$ . Da dann nach (2) mit  $b(\text{X-Band}) = 1,016\text{ cm}$  Pumpstrahlung oberhalb ca.  $14,8\text{ GHz}$  im Signalhohlleiter ausbreitungsfähig ist, war vor dem Detektor eine Sperre vonnöten, für die

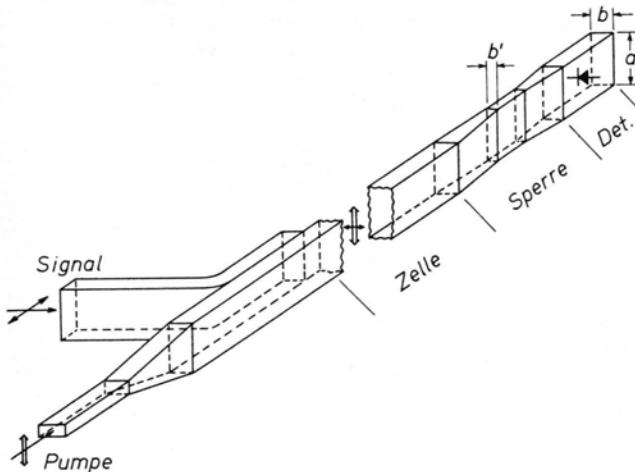


Abb. 2. Schematischer Aufbau des Hohlleiterzuges des Doppelresonanzspektrometers mit gekreuztem Pump- ( $\uparrow$ ) und Signalfeld ( $\leftrightarrow$ ).

$b' = 0,4\text{ cm}$  und  $a = a(\text{X-Band}) = 2,286\text{ cm}$  sowie eine wirksame Länge von ca.  $18\text{ cm}$  (bei  $24\text{ GHz}$ ) gewählt wurde. Damit war jetzt der nachgeschaltete X-Band-Hohlleiter für die  $TE_{01}$ -Pumpstrahlung gesperrt. Der Hohlleiteraufbau ist schematisch in Abb. 2 gezeigt, die aus Abb. 2 von<sup>1</sup> lediglich durch Austausch des Detektors hervorgeht. Eine in üblicher Weise in den X-Band-Hohlleiter eingesetzte Detektordiode ist i. wes. nur für  $TE_{10}$ -Strahlung empfänglich, sollte also die unterdrückende Wirkung der Sperre auf  $TE_{01}$ -Strahlung noch unterstützen. Im praktischen Betrieb erwies sich die Sperre nicht als voll ausreichend, vermutlich weil ein kleiner Teil der Pumpstrahlung an den vielfältigen Störstellen im Hohlleiterzug Wellenmodusumwandlung erleidet, was z. B. bei der Einkopplungsstelle des Signals nie ganz vermeidbar ist. Für in  $TE_{10}$  umgewandelte Pumpstrahlung ist die Sperre natürlich unwirksam, der Detektor jedoch wieder empfänglich. Dieser Teil der Strahlung konnte durch ein vor den Detektor gesetztes Tiefpaßfilter (Sivers Lab.) von  $35\text{ dB}$  Dämpfung unterdrückt werden. Zur Abtrennung der vollen Pumpleistung bei einem Experiment mit parallelen Feldern hätte dieses Filter allein aber schwerlich ausgereicht. Bereits dieser Vorteil scheint uns geeignet, bei einem Experiment mit höherfrequenter Pumpe der Anordnung mit gekreuzten Feldern den Vorzug zu geben, zumal der Aufwand um nichts höher ist.

Als X-Band-Signalquelle wurde ein CSF-Carcinotron 521 B verwendet, das mittels FD 3 und FDS 30 (Schomandl) phasenstabil durchstimmbar war. Ein CSF-Carcinotron CO 1308 B diente als Pumpstrahlungsquelle, es wurde bei fester Frequenz mittels FDS 3 frequenzstabilisiert betrieben und durch eine an das Gitter gelegte negative Rechteckspannung von  $50\text{ V}$  mit  $32\text{ KHz}$  ein/aus-moduliert. Der weitere elektronische Aufbau ist in<sup>1</sup> beschrieben, soweit er nicht von hier vorhandenen Stark-Effekt-Spektrometern übernommen wurde<sup>4</sup>.

Das Doppelresonanzexperiment verlief erfolgreich. Abb. 3 zeigt die Registrierung (Pumpe oberhalb, in sowie auch unterhalb Resonanz). Durch Verwendung von Phasenmodulation erscheint das eigentliche Doppelresonanzdublett nach unten, der Signalübergang in der Halbperiode ohne Pumpe nach oben geschrieben. Die Pumpleistung in der Zelle betrug nur ca.  $5\text{ mW}$ . Es ist bemerkenswert, daß dennoch ein einwandfreies Signal erhalten wurde. Sicher trägt der geringe Gasdruck in der Zelle zu einer bei vergleichsweise niedriger Pumpleistung erreichbaren Sättigung bei. Überdies wird die Pumpstrahlung an der Sperre praktisch reflektiert und bei Rückkehr zur Quelle in einem Isolator absorbiert, so daß sich in der Zelle stehende Wellen aufbauen. Dadurch wird die effektive Zelllänge zwar verkürzt, die Pumpfeldstärke in den Bäuchen jedoch verstärkt, was bei an sich schwacher Pumpe gewiß von Vorteil ist (ausreichende Länge der Zelle oder Größe der Übergangsmatrixelemente vorausge-

<sup>3</sup> J. D. SWALEN u. D. R. HERSCHBACH, J. Chem. Phys. **27**, 100 [1951].

<sup>4</sup> H. D. RUDOLPH, Z. Angew. Phys. **13**, 401 [1961]; — H. D. RUDOLPH u. H. SEILER, Z. Naturforsch. **20 a**, 1682 [1965].

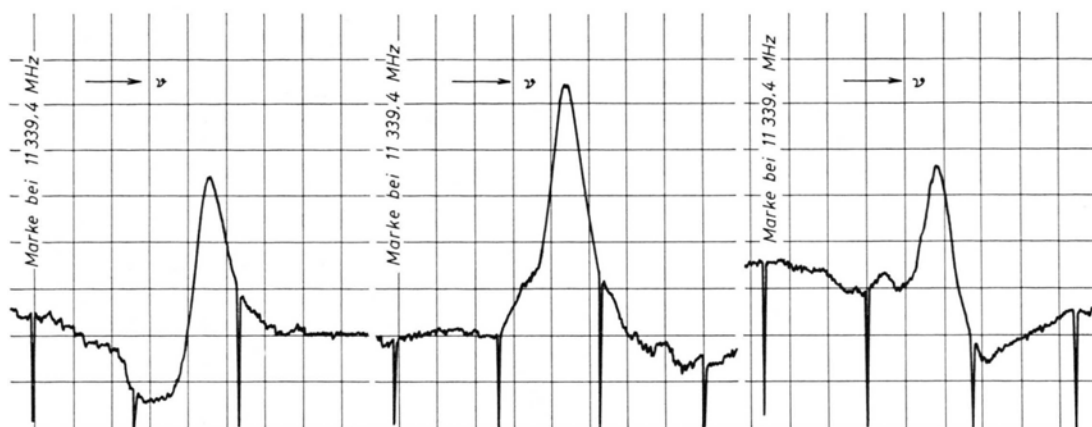


Abb. 3. Doppelresonanzregistrierung  $1_{01} \rightarrow 1_{11}$  ( $0_{00} \Rightarrow 1_{11}$ ) von Propylenoxyd  $\text{CH}_3\text{CHOCH}_2$ . Signalfrequenz durchgestimmt (Markenabstand 1,4 MHz), Signalfrequenz bei 11 341,6 MHz. Pumpfrequenz fest; 3,64 MHz oberhalb, bei und 3,64 MHz unterhalb Pumpresonanz 23 975,2 MHz in der Reihenfolge der Teilbilder. Pumpleistung ca. 5 mW, Druck ca. 20 mTorr.

setzt). Wegen der ungleichmäßigen Pumpfeldstärke längs der Zelle wird freilich das Doppelresonanzdublett bzw. dessen evtl. vorhandene M-Struktur<sup>5</sup> in der Registrierung noch stärker verwaschen erscheinen als es wegen der Abnahme des Pumpfeldes längs der Zelle durch Dämpfung ohnehin der Fall wäre. Kommt es jedoch (wie meistens) auf den bloßen Nachweis einer Doppelresonanzverbindung von Niveaus an, so kann selbst das von Vorteil sein, weil dann das registrierte Signal auf verhältnismäßig glatter, „ausgeglichener“ Grundlinie aufgesetzt erscheint. In Abb. 3 ist der Ansatz zu einer solchen Glättung erkennbar (obwohl dieser Übergang noch keine M-Struktur aufweist). Die beschriebene Überhöhung des Pumpfeldes in der Zelle

ließe sich vermutlich noch vergrößern, wenn die Zelle noch stärker für die jeweilige feste Pumpfrequenz resonant gemacht wird, was sich in Näherung sogar ohne Beeinträchtigung der Transmission für die durchgestimmte Signalfrequenz bewerkstelligen ließe. Jedenfalls sollte die hier nachgewiesene Tatsache, daß als Pumpquellen auch Oszillatoren geringer Leistung taugen, wie sie als Strahlungsquellen in der Rotationspektroskopie generell Verwendung finden, zur häufigeren Benutzung von Doppelresonanzexperimenten bei der spektroskopischen Zuordnung anregen.

Wir danken der Deutschen Forschungsgemeinschaft und dem Fonds der Chemischen Industrie für die Förderung dieser Arbeit.

<sup>5</sup> G. W. FLYNN, J. Mol. Spectry. **28**, 1 [1968].