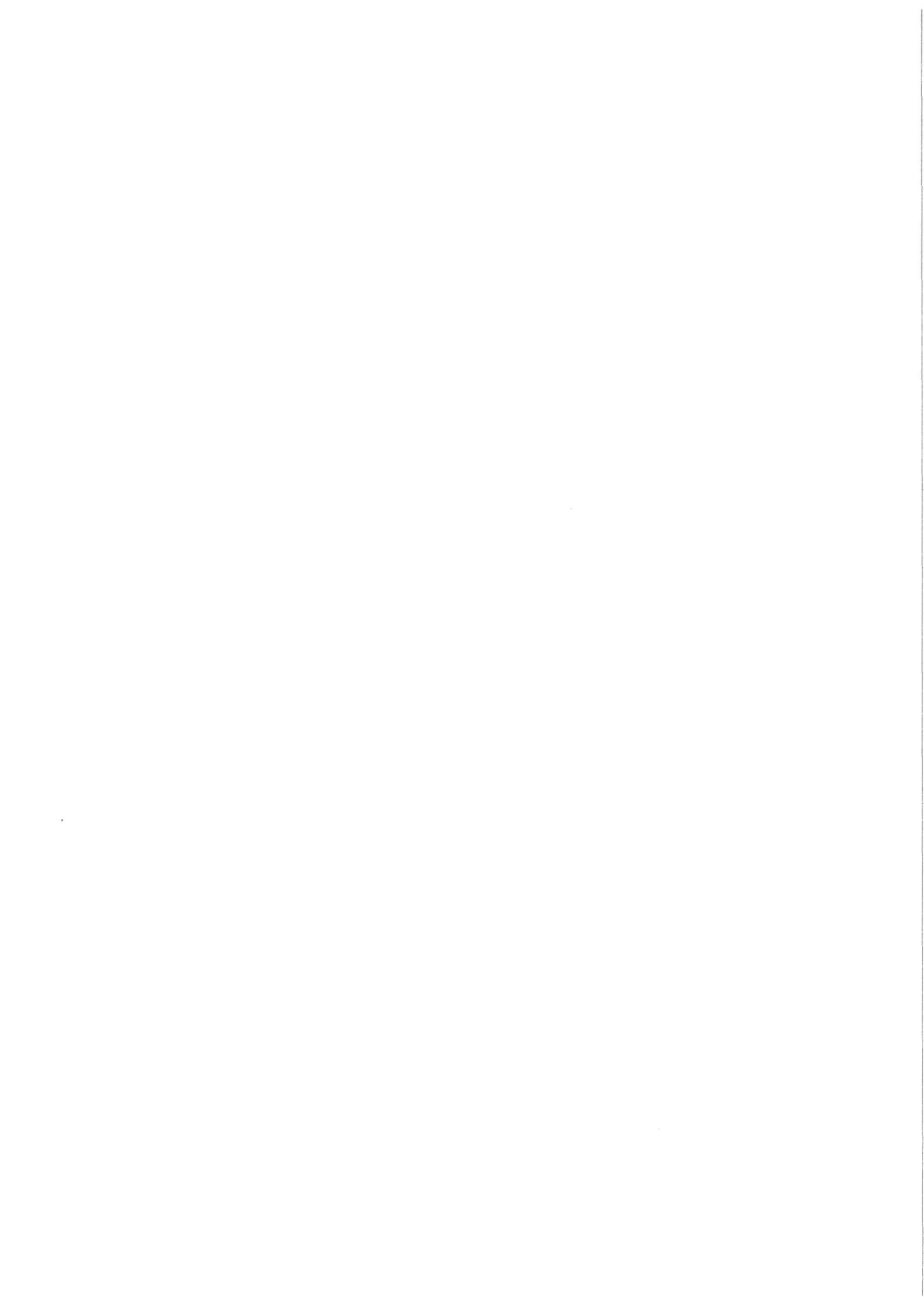


KfK 3797  
August 1984

**Laserspektroskopische  
Untersuchungen der optischen  
Isotopieverschiebung  
und Hyperfeinstruktur  
bei stabilen und radioaktiven  
Blei- und Zinn-Nukliden**

M. Anselment  
Institut für Kernphysik

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE  
Institut für Kernphysik

KfK 3797

LASERSPEKTROSKOPISCHE UNTERSUCHUNGEN DER  
OPTISCHEN ISOTOPIEVERSCHIEBUNG UND HYPER-  
FEINSTRUKTUR BEI STABILEN UND RADIOAKTIVEN  
BLEI- UND ZINN-NUKLIDEN

M. Anselment



Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt  
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

## Zusammenfassung

Isotopieverschiebung und Hyperfeinstrukturaufspaltung des Pb I  $6p^2\ ^3P_0 - 6p7s\ ^3P_1$ -Resonanzübergangs ( $\lambda = 283,3$  nm) und Sn I  $5p^2\ ^3P_0 - 5p6s\ ^3P_1$ -Resonanzübergangs ( $\lambda = 286,3$  nm) wurden in 19 Pb-Isotopen und 17 Sn-Isotopen sowie in einigen Isomeren untersucht. Es wurde die Resonanzfluoreszenz nach Anregung der Pb- bzw. Sn-Atome in einem gut kollimierten Atomstrahl mittels eines schmalbandigen durchstimmbaren Dauerstrich-Farbstofflasers beobachtet. Ziel der Experimente war die Bestimmung der Änderung der mittleren quadratischen Radien der Kernladungsverteilung und der Kernmomente. Die Ergebnisse werden diskutiert unter dem Gesichtspunkt ihrer Information über die Kernstruktur und es werden verschiedene Modellvorstellungen beleuchtet. Es zeigt sich, daß die Variation der ms-Radien wenig von Deformationseffekten sondern von feineren Schalenstruktureffekten beeinflusst ist.

## Abstract

### Laserspectroscopic study of the optical isotope shift and hyperfine structure of stable and radioactive lead- and tin-nuclides

The isotope shift and hyperfine structure of the Pb I resonance line ( $6p^2\ ^3P_0 - 6p7s\ ^3P_1$ ;  $\lambda = 283,3\text{ nm}$ ) and Sn I resonance line ( $5p^2\ ^3P_0 - 5p6s\ ^3P_1$ ;  $\lambda = 286,3\text{ nm}$ ) have been studied in 19 Pb-isotopes and 17 Sn-isotopes including some isomeres. Resonance fluorescence was observed in a well-collimated atomic beam of lead and tin, respectively, excited by narrowband tunable continuous dye laser. The aim of the experiment was to determine the changes of the mean square radius of the nuclear charge distributions and the nuclear electromagnetic moments. The results are discussed in terms of the information they provide about the nuclear structure, illustrating various theoretical models. The variation of the mean square charge radius is less affected by deformation effects than by specific shell effects in the nuclear structure of the considered nuclei.

## INHALTSVERZEICHNIS

	Seite
1. EINLEITUNG	1
2. EXPERIMENT	4
2.1 Prinzip der experimentellen Methode	4
2.2 Kohärente UV-Lichtproduktion	7
2.2.1 Die verwendeten Laser	7
2.2.2 Die Frequenzverdopplung	8
2.3 Die Atomstrahlapparatur	9
2.4 Der Fluoreszenzlichtnachweis	10
2.5 Die Durchstimmung und Frequenzmessung	13
2.5.1 Das Vielkanal-Verfahren	14
2.5.2 Das Heterodyn-Verfahren	15
2.5.3 Das Seitenband-Verfahren	18
3. HERSTELLUNG DER PRÄPARATE	24
4. MESSERGEBNISSE	27
5. KERNLADUNGSRADIEN UND KERNMOMENTE	37
5.1 Isotopieverschiebung	37
5.2 Bestimmung der mittleren quadratischen Ladungsradien	44
5.2.1 Bestimmung von $\delta\langle r^2 \rangle$ für Pb	47
5.2.2 Bestimmung von $\delta\langle r^2 \rangle$ für Sn	51
5.3 Hyperfeinstruktur und Kernmomente	56
5.4 Diskussion	60
Anhang	
DER GRUNDZUSTANDSSPIN VON $^{199}\text{Pb}$	71
LITERATURVERZEICHNIS	75

## 1. EINLEITUNG

Die Untersuchung nuklearer Effekte in atomaren oder molekularen Übergängen ist eine wichtige Quelle für Informationen über die Eigenschaften der Atomkerne, die bereits in den Anfängen der Kernphysik von großer Bedeutung war /KOP 56/. Aus der Beobachtung der Isotopieverschiebung optischer Spektrallinien gewinnt man einen Einblick in die Variation der Verteilung der elektrischen Ladung in Atomkernen mit gleicher Protonen-, doch verschiedener Neutronenzahl. Die Hyperfeinstruktur ist bestimmt von der Wechselwirkung der elektrischen Ströme und statischen Momente (dem magnetischen Dipolmoment des Atomkerns) sowie von der nichtsphärischen Komponente der elektrischen Ladungsverteilung (Quadrupolmoment) mit den elektrischen und magnetischen Feldern der Atomelektronen. Die kernnahen Atomelektronen erweisen sich dabei als empfindliche Sonden für Eigenschaften des Atomkerns.

Mit der Einführung hochauflösender laserspektroskopischer Methoden /DEM 77/ konnte in der jüngsten Vergangenheit die Empfindlichkeit der optischen Spektroskopie so gesteigert werden, daß die interessierenden Effekte mit Proben äußerst geringer Substanzmengen beobachtet werden können. Dieser grundsätzliche Vorteil der optischen Spektroskopie gegenüber Streuexperimenten oder dem Studium myonischer Röntgenstrahlung hat die Ausdehnung der Untersuchungen auf instabile Atomkerne, die in Kernumwandlungen z.B. am Beschleunigerstrahl künstlich erzeugt werden, ermöglicht /BEM 82/. Dabei sind Untersuchungen langer Isotopenreihen, die weit aus dem Tal der stabilen Kerne reichen, von besonderem Interesse. Aber auch an den stabilen Isotopen gewährt die gesteigerte Genauigkeit der experimentellen Resultate oft neue Einsichten in Details, die früher nicht beobachtet werden konnten.

Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist die experimentelle Untersuchung der Variation der mittleren quadratischen Ladungsradien und der elektromagnetischen Momente in längeren Isotopenreihen

stabiler und radioaktiver Blei- und Zinn-Nuklide. Hierzu wurden Isotopieverschiebungen und Hyperfeinstrukturaufspaltungen des  $6s^2 6p^2 \ ^3P_0 - 6s^2 6p7s \ ^3P_1$ -Übergangs in atomarem Blei und des  $5s^2 5p^2 \ ^3P_0 - 5s^2 5p6s \ ^3P_1$  in atomarem Zinn für 19 Pb- bzw. 17 Sn-Nuklide gemessen. Die Messungen beruhen auf der Beobachtung des Resonanzfluoreszenzlichtes, das an einem Strahl freier Atome durch Einstrahlung des Lichtes eines durchstimmbaren Farbstofflasers hoher spektraler Auflösung gewonnen wurde.

Das Interesse an der Isotopieverschiebung und Hyperfeinstruktur in Pb-Übergängen als Quelle für Kernstrukturinformation geht auf Untersuchungen von Kopfermann /KOP 32/ zurück, wobei bereits 1952 das natürlich vorkommende radioaktive Nuklid  $^{210}\text{Pb}$  (RaD) untersucht wurde /BRI 52/. Neuere Arbeiten betreffen Zweiphotonenspektroskopie an stabilen Pb-Isotopen /LIN 81/, Atomstrahl-Laserspektroskopie /HÜF 82/ und Absorptionsstudien /MOS 81/, sowie die Untersuchung der Verschiebung der  $K_\alpha$ -Röntgenstrahlung in normalen /BOR 83/ und myonischen Atomen /KES 75/ stabiler Isotope. In der vorliegenden Arbeit werden neben einer Steigerung der Genauigkeit die Messungen auf Pb-Nuklide mit kürzerer Lebensdauer ausgedehnt. Ein Teil der Ergebnisse an den Pb-Isotopen ist in /THO 81, THO 83/ veröffentlicht worden. Untersuchungen an der langen Reihe der stabilen Sn-Nuklide von  $^{112}\text{Sn}$  bis  $^{124}\text{Sn}$  wurden kürzlich von Baird /BAI 83/ durchgeführt, wobei frühere Ergebnisse /SIL 73a/ erheblich verbessert wurden. Durch unsere Messungen an stabilen und radioaktiven Sn-Nukliden werden die experimentellen Befunde überprüft und beträchtlich erweitert, so daß das systematische Verhalten an den gewonnenen Kernstrukturgrößen recht deutlich wird.

In beiden Fällen, Pb ( $Z = 82$ ) und Sn ( $Z = 50$ ), handelt es sich um Isotopenreihen mit einer magischen Protonenzahl, und man erwartet, daß diese Kerne nur gering deformiert sind. Das wird durch die gemessenen Werte des Quadrupolmomentes bestätigt. Man darf daher erwarten, daß feinere Kernstruktureffekte sichtbar werden, die sonst von Deformationseffekten überlagert sind. Die Befunde werden im Vergleich mit theoretischen Voraussagen und anderen experimentellen Befunden diskutiert.

Im folgenden wird zunächst auf den Aufbau und die einzelnen Komponenten des Experiments eingegangen, sodann auf die Produktion der radioaktiven Isotope fernab des Stabilitätstailes, für die gute Voraussetzungen am Karlsruher Isochronzyklotron gegeben sind. Die Probleme bei der Ableitung der mittleren quadratischen Ladungsradien und Kernmomente aus den Isotopieverschiebungen und den A- und B-Faktoren werden erläutert.

## 2. EXPERIMENT

### 2.1 Prinzip der experimentellen Methode

Die hier beschriebenen Experimente wurden durch nahezu doppelfreie Anregung der Resonanzfluoreszenz an einem Strahl freier Atome mittels eines schmalbandigen Farbstoff-Ringlasers (Coherent, Modell 699) durchgeführt. Die resonante Anregung der neutralen Bleiatome erfolgte vom  $6s^2 6p^2 \ ^3P_0$ -Grundzustand auf das  $6s^2 6p7s \ ^3P_1$ -Niveau bei einer Wellenlänge von 283,3 nm (Fig. 2.1), d.h. im UV-Bereich. Der Zerfall dieses angeregten Niveaus in den  $6s^2 6p^2 \ ^3P_2$ -Zustand wurde bei einer Wellenlänge von 406 nm mit einem Photomultiplier (EMI Typ 9635B; mit Bialkali-Photokathode) beobachtet. Die neutralen Sn-Atome wurden vom  $5s^2 5p^2 \ ^3P_0$ -Grundzustand bei einer Wellenlänge von 286,3 nm in den  $5s^2 5p6s \ ^3P_1$ -Zustand angeregt (Fig. 2.2). Der Zerfall in den  $5s^2 5p^2 \ ^1D_2$ -Zustand wurde bei einer Wellenlänge von 380,1 nm beobachtet.

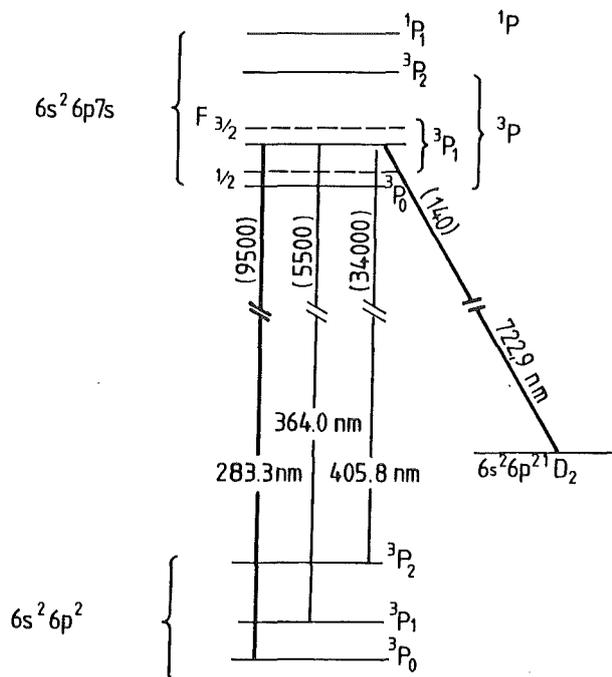


Fig. 2.1 Ausschnitt aus dem Termschema für Pb. Angegeben sind die Wellenlängen der Übergänge /MOO 71/ sowie in Klammern die relativen Übergangsraten der spontanen Emission /MEG 75/.

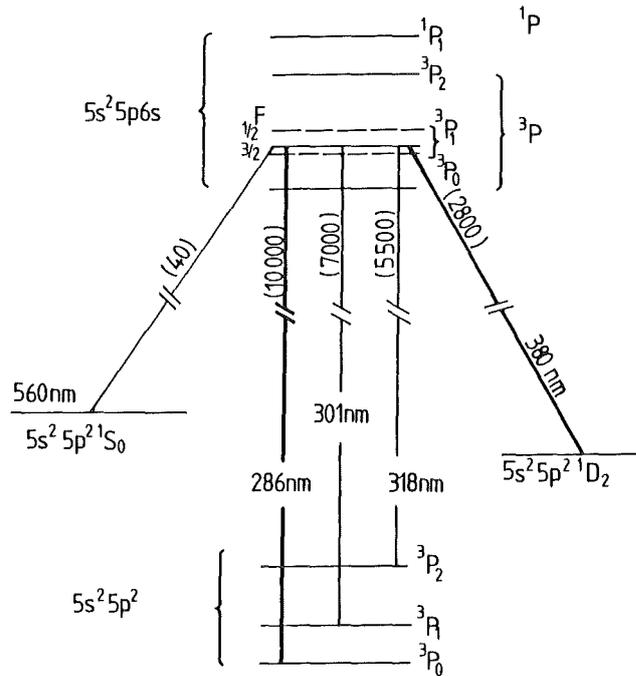


Fig. 2.2 Ausschnitt aus dem Termschema für Sn. Angegeben sind die Wellenlängen der Übergänge /MOO 71/ sowie in Klammern die relativen Übergangsraten der spontanen Emission /MEG 75/.

Zur dopplerfreien Beobachtung einer Resonanzlinie wird ein nach oben gerichteter Atomstrahl kollimiert und senkrecht von einem Laserstrahl gekreuzt. Die Beobachtung des Resonanzlichtes geschieht senkrecht zu Atomstrahl und Laserstrahl. Das Fluoreszenzlicht der Isotope wird mittels eines Photomultipliers über eine Photonenzählung nachgewiesen. Die Intensität des eingestrahltten kohärenten UV-Lichts wurde zur Normierung ebenfalls erfaßt. Die Pb-Anregungsfrequenz ist von Isotop zu Isotop um ca. 1 - 2 GHz verschoben (Isotopieverschiebung), im Falle des Sn betrug diese Verschiebung ca. 300 MHz. Zur Kontrolle und Bestimmung dieser optischen Frequenzänderungen wurden im Rahmen dieser Arbeit drei verschiedene Meßmethoden verwendet, die sich durch den technischen Aufwand und die dadurch erzielbare Genauigkeit unterscheiden:

- Vielkanal-Verfahren

Dieses diente zur Grobbestimmung der Lage von Resonanzlinien, insbesondere für Isotope, die zum ersten Mal gemessen wurden. Dabei wurde der Laser intern über ein größeres Frequenzgebiet durchgestimmt bei synchronem Mitlauf eines Vielkanalanalysators.

Die Eichung erfolgte mit mittlerer Genauigkeit vorher und nachher durch Aufnahme der äquidistanten Resonanzen eines unstabilisierten 300-MHz-Interferometers.

- Heterodyn-Verfahren

Dabei wurde ein linearer Farbstofflaser (Coherent, Modell 599-21) in der Nähe eines Übergangs eines natürlichen Isotops stabilisiert, während relativ zu dieser so gewonnenen Referenzfrequenz der Farbstoff-Ringlaser durchgestimmt wurde. Mit diesem Laser wird dabei das Spektrum des zu messenden Resonanzübergangs überfahren und aufgenommen. Durch Überlagerung der beiden Laserstrahlen auf einer Photodiode hoher Reaktionsgeschwindigkeit (55 ps) und anschließende Messung der entstehenden Differenzfrequenz mit einem Hochfrequenz-Spektrum-Analysator wurde diese bestimmt. Über eine Kopplung des Farbstoff-Ringlasers an den Hochfrequenz-Spektrum-Analysator konnte der Laser auf eine wählbare Differenzfrequenz relativ zum Referenzlaser aktiv geregelt werden.

Durch eine entsprechende Änderung der Soll-Lage der Differenzfrequenz konnte der Laser über einen gewünschten Frequenzbereich durchgestimmt werden. Die Eichung der Frequenzskala erfolgte mit einem Frequenzgenerator, dessen Oszillation anstelle des Mischungs-signals in den Spektrum-Analysator eingespeist wurde.

- Seitenband-Verfahren

Das Licht des Farbstoff-Ringlasers wurde mittels eines doppelbrechenden Kristalles, an welchen eine hochfrequente Wechselspannung angelegt wurde, amplitudenmoduliert, so daß hinter dem Kristall das Laserlicht neben seiner Trägerfrequenz noch zwei Seitenfrequenzen enthielt. Diese Seitenfrequenzen sind genau um die Frequenz der angelegten Wechselspannung von der Trägerfrequenz hin zu niedriger und höherer Frequenz verschoben. Eine Änderung der hochfrequenten Wechselspannung änderte somit auch den Abstand der Seitenfrequenzen von der Trägerfrequenz. Über eine Frequenzstabilisierung eines der beiden Seitenbänder auf feste Frequenz gewinnt man Regelsignale, die auf den Farbstoff-Ringlaser zu dessen Durchstimmung und aktiver Regelung gegeben wurden (Folgeregelung). Somit konnte der Farbstoff-Ringlaser um den Betrag der Änderung der hochfrequenten Wechselspannung definiert in seiner Absolutfrequenz um diesen Betrag verschoben werden. Die Eichung der Frequenzskala ergibt sich aus dem vorgegebenen Wert für die Frequenz der angelegten Wechsel-

Licht- und Atomstrahlproduktion sowie der Fluoreszenzlichtnachweis werden im folgenden für Pb und Sn zusammen beschrieben. Die drei verschiedenen Methoden für die Durchstimmung und Frequenzmessung werden getrennt dargestellt.

## 2.2 Kohärente UV-Lichtproduktion

Da die Anregungswellenlängen sowohl bei Pb mit 283,3 nm als auch bei Sn mit 286,3 nm im UV-Bereich liegen und weil in diesem Bereich z.Z. keine durchstimmbaren Laser verfügbar sind, mußte die Lichterzeugung in zwei Stufen erfolgen: zunächst die Laserlichtproduktion im Bereich von 566,7 nm für Pb und 572,7 nm für Sn mit Hilfe eines Farbstoff-Ringlasers (Coherent, Modell 699) im grün-gelben Bereich arbeitend und anschließend die externe Frequenzverdopplung in den gewünschten UV-Bereich.

### 2.2.1 Die verwendeten Laser

Der Farbstoff-Ringlaser wird mit der 514,5 nm-Emission eines  $\text{Ar}^+$ -Lasers mit ca. 7 - 10 W gepumpt. Für Pb wurde der Farbstoff Rhodamin 504 (Mischung: 1,26 g Rh504 auf 1 l Ethylenglycol) verwendet und bei 7 W Pumpleistung eine Single-mode-Ausgangsleistung von 700 mW erreicht. In besonderen Fällen konnte mit Rhodamin 6G bei 10 W Pumpleistung auch 1 W erzielt werden. Für Sn wurde der Farbstoff Rhodamin 6G (Mischung: 1,1 g Rh6G auf 1 l Ethylenglycol) verwendet und bei 7 W Pumpleistung 1,5 W Single-mode-Ausgangsleistung erreicht. Diese konnte bei 10 W Pumpleistung bis auf 2 W gesteigert werden.

Die Linienbreite des Farbstoff-Ringlasers (Coherent, Modell 699) beträgt nominell ca.  $1 \text{ MHz}_{\text{eff}}$ . Er läßt sich sowohl intern als auch extern über 30 GHz elektronisch durchstimmen, und er wurde auch in diesen beiden Betriebsarten benutzt. Der Laser wird mit je einem konfokalen 2-GHz- und 10-GHz-Fabry-Perot-Interferometer oszilloskopisch auf Einmodenbetrieb hin fortlaufend kontrolliert.

Linienbreite und Durchstimmbereich sind für den linearen Farbstofflaser (Coherent, Modell 599-21) identisch mit denen des Ringlasers. Die maximal erreichbare Ein-Moden-Ausgangsleistung liegt aber eine

Größenordnung tiefer, weil die Nebenmoden, die bei einer Pumpleistung des  $\text{Ar}^+$ -Lasers höher als ca. 2 - 3 W entstehen, nicht unterdrückt werden können.

### 2.2.2 Die Frequenzverdopplung

Kernstück der Frequenzverdopplung ist ein ca. 5 cm langer Kristall aus Ammoniumdihydrogen-Arsenat (ADA). Er ist optisch nichtlinear, so daß er geringe Intensitäten der zweiten Harmonischen einer eingestrahnten Lichtfrequenz produzieren kann. Bedingung für eine hohe Umwandlungsrate in die zweite Harmonische ist neben der richtigen Fokussierung des eingestrahnten Laserlichts vor allem eine Angleichung der Phasengeschwindigkeiten für die Grundfrequenz und die doppelte Frequenz im Verdoppler-Kristall ("phase-matching"). Dies ist entweder über Winkel- oder wie in unserem Fall über Temperaturanpassung möglich /BOY 68/. Zum Fokussieren der Grundwelle in den Kristall wurde eine Linse mit einer Brennweite von 100 mm verwendet; der Fokus hat dann eine Dicke von ca. 55  $\mu\text{m}$ .

Für Pb mußte der Kristall bei ca.  $-45^\circ\text{C}$  auf  $\pm 0,1^\circ\text{C}$  genau gekühlt werden. Bei einer Eingangsleistung von 700 mW vertikal polarisiertes Laserlichts der Wellenlänge 566,7 nm konnte horizontal polarisiertes UV-Licht bei  $\lambda = 283,3$  nm mit einer Intensität von ca. 500  $\mu\text{W}$  produziert werden.

Im Falle des Sn mit der Eingangswellenlänge von 572,7 nm und einer Intensität von 1,5 W kann bei einer Temperatur von ca.  $-20^\circ\text{C}$  UV-Licht bei  $\lambda = 286,3$  nm mit einer Intensität von 1,2 mW erzielt werden.

Zur Wiederherstellung nahezu parallelen Laser- und UV-Lichtes wurde eine Quarz-Linse von 150 mm Brennweite hinter dem Kristall angebracht. Das nicht exakt parallele UV-Licht bildet eine der Quellen für die geringe Dopplerverbreiterung der Resonanzlinien.

Die Trennung der Oberwelle von der Grundwelle erfolgte über ein Quarz-Prisma. Das UV-Licht wurde anschließend über zwei Umlenker in die Atomstrahlapparatur eingefädelt.

### 2.3 Die Atomstrahlapparatur

Die bei den Pb- und Sn-Experimenten verwendete Atomstrahlapparatur wurde mit geringfügigen Änderungen von früheren Ba- und Ca-Experimenten übernommen. Detaillierte Darstellungen befinden sich in den Arbeiten /BEK 79, AND 81/. Die durchgeführten Änderungen werden im folgenden beschrieben.

Die Grundanforderungen an die Apparatur /FEU 76/ sind neben einer guten Bündelung des Atomstrahls, gerade wegen kleinster Probenmengen, auch eine gute Kollimierung über Blenden zur Vermeidung von Dopplerverbreiterung. Eine weitere Anforderung ist die gute Unterdrückung des Streulicht- und  $\gamma$ -Untergrundes bei hoher Nachweiswahrscheinlichkeit für das geringe Resonanzlicht.

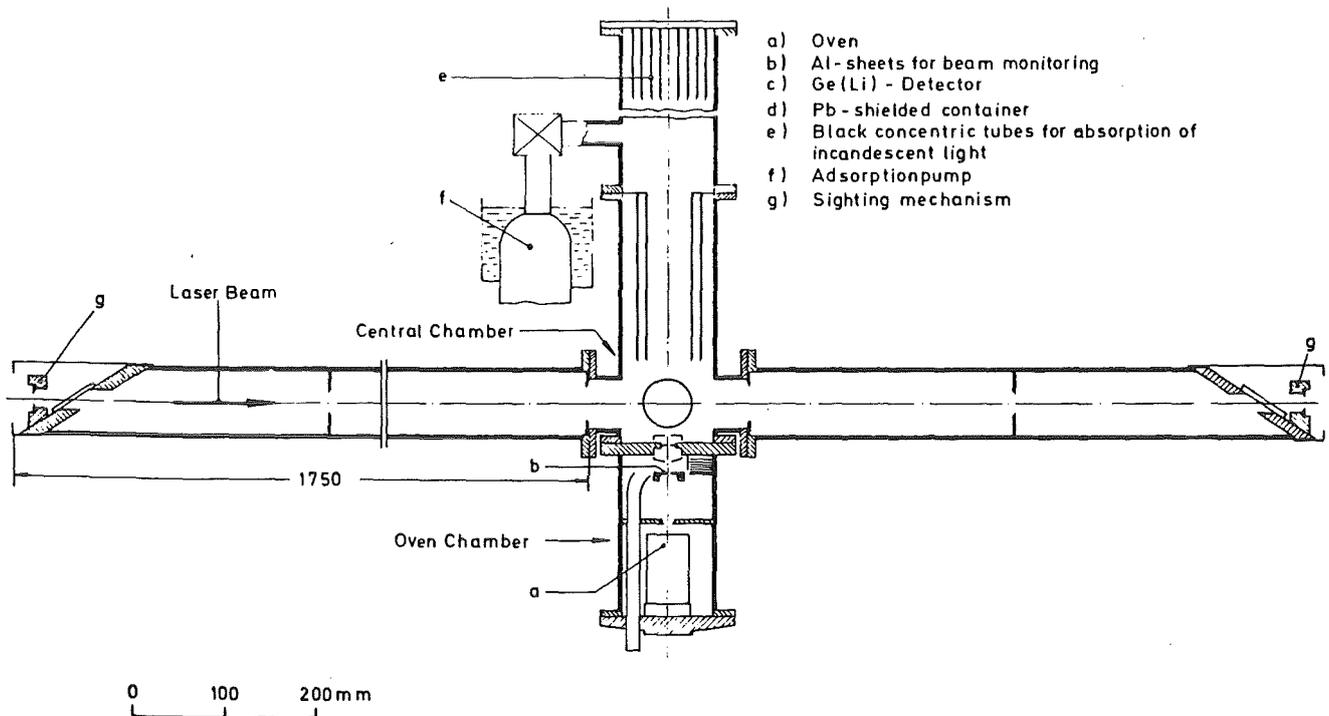


Fig. 2.3: Schnitt durch die Atomstrahlapparatur in der Ebene von Laser- und Atomstrahl. Der Atomstrahl trifft von unten kommend innerhalb des eingezeichneten Kreises den Laserstrahl. Aus der Bildebene heraus ist die Fluoreszenznachweisvorrichtung angebracht. Das Sammeln des Fluoreszenzlichts ist auf den Mittelpunkt des Kreises fokussiert.

Die Grundaussführung der Atomstrahlapparatur besteht aus einer auf  $10^{-5}$  -  $10^{-6}$  Torr evakuierten Kammer mit langen horizontalen Armen für den Ein- und Auslaß des Laserstrahls (Fig. 2.3). Senkrecht darunter befindet sich die Ausheizvorrichtung, so daß der entstehende Strahl freier Atome mit einem Winkel von  $90^\circ$  den Laserstrahl trifft. Wiederum senkrecht zu den beiden Strahlrichtungen ist das Sammeln des Fluoreszenzlichtes auf den Wechselwirkungsort zwischen Laser- und Atomstrahl fokussiert.

Für das Ausheizen der mit Pb gering gefüllten Tiegel aus Molybdän konnte eine Widerstandsheizung verwendet werden, bestehend aus bifilar angeordneten Wolfram-Wicklungen, die durch Aluminiumoxid-Röhrchen voneinander und gegen den Tiegel isoliert sind. Mit dieser Heizung konnten im Tiegel Temperaturen bis  $1400^\circ\text{C}$  erreicht werden, was für das Verdampfen von Blei ausreichte. Dabei erreichte der heizende Wolfram-Draht Temperaturen über  $2000^\circ\text{C}$ .

Bei höheren Tiegeltemperaturen als  $1400^\circ\text{C}$ , die für Sn erforderlich sind, reagierte das Wolfram chemisch mit den isolierenden  $\text{Al}_2\text{O}_3$  - Röhrchen und machte häufig Reparaturen nötig, was vor allem wegen der in der Apparatur vorhandenen Radioaktivität vermieden werden mußte. Die Umstellung auf eine inzwischen über mehrere Monate wartungsfrei funktionierende Elektronenstoßheizung behob diese Probleme und erbrachte auch die für Sn nötigen höheren Tiegeltemperaturen von  $1600$  -  $1800^\circ\text{C}$ . Das Tiegelmateriale wurde auf Graphit umgestellt und es wurden einige Vorkehrungen gegen das bei diesen hohen Temperaturen stärker auftretende Glühlicht getroffen.

#### 2.4 Der Fluoreszenzlichtnachweis

Auch hier wurde der Aufbau von den früheren Ba- und Ca-Experimenten übernommen und ist in den entsprechenden Arbeiten /BEK 79, AND 81/ ausführlich dokumentiert. Wesentliche Änderungen erfolgten lediglich mit der Ersetzung der Farbfilter durch Interferenzfilter. Da sowohl bei Pb, aber insbesondere bei Sn höhere Temperaturen als bei Ba und Ca benötigt wurden, erhöhte sich der Glühlichtuntergrund. So ergab sich für Pb bei Temperaturen von ca.  $1300^\circ\text{C}$  eine Gesamtuntergrundzählrate von 300 Hz. Durch Benutzung eines Interferenz-

filters (Hersteller: Fa. Anders) mit einer Mittenwellenlänge von 406 nm bei einer Halbwertsbreite von 6,7 nm sowie einer Transmission von 40 % konnte dieser Wert auf 20 Hz bei einem Signalverlust von 60 % gedrückt werden. Proben von 3 pg ( $10^{10}$  Atome), die z.Z. die unterste Nachweisgrenze für Pb darstellen, konnten so mit einem Signal-zu-Untergrund-Verhältnis von 5:1 gut sichtbar gemacht werden.

#### Signalratenbetrachtungen:

Bei einer Ansprechwahrscheinlichkeit des Photomultipliers (EMI, Typ 9635 B, mit Bialkali-Photokathode) von ca. 20 % bei der Nachweiswellenlänge und unter Berücksichtigung der Verluste an den optischen Elementen (8 Oberflächen mit je ca. 4 % Reflexionsverlust), sowie dem erfaßten Raumwinkel von  $0,22 \cdot 4 \pi$  ergibt sich eine Nachweiswahrscheinlichkeit von 3 % für das Fluoreszenzlicht. Durch Benutzung des Interferenzfilters erniedrigt sich dieser Wert bei Pb auf 1,3 % . 3 pg  $^{208}\text{Pb}$  ergeben z.Z. eine Zählrate von 10 counts/10 ms im Resonanzmaximum bei einer Vielkanalmessung mit einer Meßzeit von 10 Sekunden und 10 GHz UV-Scanwidth des Lasers (1024 Channels, 1 ms Dwelltime, 20 Sweeps). D.h. wir benötigen  $10^9$  Atome, um davon eines leuchten zu sehen. Der geringere Teil der Verluste entsteht dabei durch die nur 1,3 % betragende Fluoreszenzlichtnachweiswahrscheinlichkeit. Der größere Teil der Verluste, ein nachgewiesenes Photon für  $1,3 \cdot 10^7$  dafür benötigte Atome, entsteht zum einen durch die Kollimierung, zum anderen durch optische Eigenschaften der benutzten Übergänge und die geringere Verweildauer im Resonanzmaximum des optischen Übergangs. Die optische Anregungswahrscheinlichkeit der Atome trägt nicht zu den Verlusten bei, da sowohl bei Pb als auch bei Sn nahezu bis vollständig Sättigung der Anregung erreicht werden konnte. Um nun die Güte der Kollimierung zu erhalten, muß von der Anzahl der gezählten Photonen im Resonanzmaximum ausgegangen werden, d.h. von 10 Photonen pro 10 ms, wobei die Dauer eines 3 pg-Bleiatomstrahls mit An- und Absteigen der Intensität ca. 10 Sekunden beträgt. Eine Hochrechnung auf das Verweilen in der Resonanzspitze ergäbe 10 000 counts pro 3 pg-Probe und damit einen wesentlich besseren Wirkungsgrad von  $1 : 10^6$ . Der verbleibende Wirkungsgrad nach Abzug der Fluoreszenzlichtnachweisverluste betrüge dann noch  $1 : 13\ 000$ . Unter Berücksichtigung, daß nur 85 % des Zerfalls im Nachweiskanal stattfindet, ergäbe sich dann für die Kollimation ein Verhältnis von  $1 : 10\ 000$ , d.h. nur 0,1 % der im Tiegel enthaltenen Pb-Atome erreichen den Laserstrahl.

Bei Sn mit den Temperaturen von 1600 - 1800°C würde sich nach der Planckschen Strahlungsformel bei einer Beobachtungswellenlänge von 380 nm ein ca. 20 mal höherer Glühlichtanteil als bei Pb einstellen. Bei der Verwendung eines Interferenzfilters (Fa. Schott, Typ UV-PIL) mit einer Wellenlänge von 389 nm, einer Halbwertsbreite von 8 nm sowie einer Transmission von 35 % mußte der Einbau mit ca. 20° gegen die Senkrechte im Fluoreszenzlichtkanal erfolgen, um eine Verschiebung der Transmissionswellenlänge von 389 nm auf die gewünschten 380,1 nm zu erzielen. Nach diesem Einbau betrug der Gesamtuntergrund ca. 40 Hz bei einer Tiegeltemperatur von ca. 1850°C (700 mA Heizstrom bei 2 kV). Proben von 40 pg (ungefähr  $2 \cdot 10^{11}$  Atome) ergaben für Sn ein Signal-zu-Untergrund-Verhältnis von 5 : 1. (Alle Untergrundangaben beziehen sich auf einen eingeführten Tiegel sowie auf eine Versorgungsspannung des Photomultipliers von 1750 V).

Dieselben Betrachtungen der Wirkungsgrade wie bei Pb ergeben für Sn die untenstehenden Werte. Berücksichtigt wurde dabei zum einen die experimentelle Erfahrung, daß 40 pg Sn eine entsprechende Zählrate von 10 counts/10 ms unter sonst gleichen Bedingungen wie bei Pb ergeben. Zum anderen geht in die Werte ein Fluoreszenzlichtnachweis von nur 0,6 % aufgrund des anders gearteten Interferenzfilters mit ein, dessen Transmission durch die Verkipfung auf nur noch 20 % abgeschätzt wurde.

Der 10-counts-Signalrate entsprechen  $2 \cdot 10^{11}$  Atome. Abzüglich der Verluste im Fluoreszenznachweis bleibt ein Verhältnis von einem nachgewiesenen Photon auf  $1,2 \cdot 10^8$  dafür im Tiegel benötigte Atome. Die Dauer des 40 pg-Sn-Atomstrahls beträgt wie bei Pb ca. 10 Sekunden. Die Hochrechnung auf das Verweilen in der Resonanzspitze mit dann 10 000 counts pro 40 pg-Probe ergibt einen Gesamtwirkungsgrad von  $1 : 2 \cdot 10^7$ . Abzüglich der Fluoreszenzlichtnachweisverluste bleibt ein Wirkungsgrad von  $1 : 120\ 000$ . Berücksichtigt man, daß nur 18 % der angeregten Atome im Beobachtungskanal bei 380 nm zerfallen, so verbleibt für das Kollimationsverhältnis ein Wirkungsgrad von  $1 : 21\ 600$ , d.h. nur 0,05 % der im Tiegel enthaltenen Sn-Atome erreichen den Laserstrahl. Der Faktor 2 relativ zu dem bei Pb errechneten Kollimationsverhältnis liegt innerhalb der Fehler der dabei benötigten Abschätzungen.

## 2.5 Die Durchstimmung und Frequenzmessung

Bei Messungen der Hyperfeinstruktur und Isotopieverschiebung ist nicht die Absolutfrequenz eines atomaren Übergangs von Interesse, sondern im Fall der Hyperfeinstruktur der energetische Abstand der einzelnen Komponenten und bei der Isotopieverschiebung die Änderung der Energie des benutzten Feinstrukturübergangs von Isotop zu Isotop. D.h. man kann sich auf eine Messung von Differenzfrequenzen zwischen den Komponenten eines Hyperfeinstruktur-Multipletts oder auf eine Messung des energetischen Abstands zwischen den Resonanzen z.B. zweier gerader Isotope beschränken, was gleichzeitig die Genauigkeit wesentlich erhöht. Z.B. entspricht bei Pb der Feinstrukturübergang bei  $\lambda = 283,3$  nm einer Frequenz von  $1,06 \cdot 10^{15}$  Hz. Die feinen Unterschiede in der Energie dieses Übergangs von einem Isotop zum nächsten liegen bei ca.  $10^9$  Hz. Die innerhalb dieser Arbeit gemessene maximale Aufspaltung des Übergangs in ein Hyperfeinstruktur-Triplett liegt bei  $25 \cdot 10^9$  Hz. Bei Sn ist die Isotopieverschiebung um eine Größenordnung kleiner als bei Pb.

Im Normalfall wurde  $^{208}\text{Pb}$  bzw.  $^{120}\text{Sn}$  den Proben als Referenz beigegeben, und es wurde jeweils der Frequenzabstand zu diesem Referenzisotop gemessen. Waren die Abstände jedoch größer als 8 GHz bei Pb bzw. 4 GHz bei Sn, so mußte aus meßtechnischen Gründen auf eine nähergelegene Referenz eines anderen stabilen Isotops ausgewichen werden. Im Anschluß wurde dieses Referenzisotop in seinem Abstand zu  $^{208}\text{Pb}$  bestimmt. Daher sind die Meßfehler für Isotope mit großen Abständen zu  $^{208}\text{Pb}$  bzw.  $^{120}\text{Sn}$  meist auch etwas größer.

Um Genauigkeiten in der Größenordnung von einem MHz und kleiner zu erhalten, muß die Laserfrequenz stabilisiert werden. Dies wurde in beiden Meßmethoden (Heterodyn- und Seitenband-Verfahren) über die Stabilisierung des Farbstoff-Ringlasers an einem optischen Referenzresonator, der wiederum an ein frequenzfestes Lasersystem angebunden war, erreicht.

Jeder Messung wurde regelmäßig eine Grobbestimmung der Frequenzlage ( $\pm 20$  MHz) der optischen Übergänge vorher noch nicht gemessener Isotope mit Hilfe eines Vielkanalanalysators vorangestellt.

Bei den oft unbekanntem Linienlagen dieser Isotope mußte in wenigen Sekunden ein Frequenzgebiet von einigen GHz mehrmals überfahren werden. Die nachfolgenden, wesentlich genaueren Meßmethoden (Heterodyn- bzw. Seitenband-Verfahren) konnten im gleichen Zeitraum nur einen bis um einen Faktor 1000 kleineren Frequenzbereich durchfahren. Die vorausgehende Grobbestimmung der Frequenzlage hat insbesondere bei geringen Mengen radioaktiver Stoffe mit sehr kleiner Atomstrahldauer eine lange Suche nach den optischen Resonanzen erübrigt. Dadurch genügte in der Regel je eine Probe für die Grobbestimmung wie für die Feinbestimmung einer Komponente.

Bei allen angewandten Meßmethoden ist der Teil des Experimentaufbaus von der UV-Produktion mittels Frequenzverdopplung ab im wesentlichen identisch (Fig. 2.4 und 2.7), d.h. der Verlauf vom Verdopplerkristall über ein Quarzprisma in die Wechselwirkungszone mit dem Atomstrahl und abschließender elektronischer Aufarbeitung der Photomultiplier-Impulse. Einzige Variation stellte stellenweise die etwa doppelt so große Auffächerung des UV-Strahls durch Verschiebung der Sammellinse hinter dem Verdopplerkristall dar, um eine bessere Ausnutzung des etwas divergenten Atomstrahls zu erhalten.

Alle Frequenzmessungen wurden am unverdoppelten, sichtbaren Laserstrahl ausgeführt.

#### 2.5.1 Das Vielkanal-Verfahren

Bei der "Vielkanalmethode" wurde der Laser über das gesamte interessierende Frequenzgebiet intern durchgestimmt bei synchronem Mitlauf des Vielkanalanalysators im Multichannel-scaling-Betrieb unter Aufnahme der Photomultiplierimpulse. Als Trigger für den Beginn eines einzelnen Durchlaufs wurde ein Blanking-Signal des Laser-Steuergerätes benutzt. Zur Frequenzeichung wurden meistens stabile Isotope als Referenzen in derselben Probe benutzt und zusätzlich die Durchlaßkurve eines 300 MHz-Interferometers aufgenommen. Der Laser läuft beim Durchstimmen in seiner Frequenz

nicht linear mit der Zeit, was in Nichtlinearitäten der Piezo-Elemente begründet liegt und auch die Hauptquelle für den wesentlich größeren Fehler dieser Meßmethode darstellt.

### 2.5.2 Das Heterodyn-Verfahren

Zur Durchstimmung des Lasers über ein Frequenzgebiet mit dem Ziel einer auf ca. 1 - 2 MHz genauen Frequenzmessung wurde bei den Pb-Experimenten die sogenannte Heterodyn-Technik verwandt. Kernstück ist die Überlagerung zweier kohärenter Lichtstrahlen auf einer Photodiode niedriger Anstiegszeit (55ps, Telefunken BPW 28 A). Die dabei von der Diode gelieferte Schwebungsfrequenz entspricht direkt der Differenzfrequenz der beiden Lichtstrahlen, die mit Hilfe eines Hochfrequenz-Spektrum-Analysators (Hewlett Packard, Modell 8555 A) bestimmt wird. Wie in Fig. 2.4 ersichtlich, wurde der lineare Farbstofflaser (Coherent, Modell 599-21) mit Hilfe einer 2-GHz-Etalon-Flankenregelung an einen He-Ne-Laser (Coherent, Tropel Modell 200) elektronisch stabilisiert und diente somit als Referenzfrequenz für die Heterodyn-Technik, zu welcher die Frequenz des zweiten Lasers relativ bestimmt wird. Wenn möglich, wurde die Frequenz des Referenz-Lasers in die Nähe des Übergangs von  $^{208}\text{Pb}$  gestellt, damit beim anschließenden Durchstimmen des zweiten Lasers beide Resonanzen, die zu messende und die des Referenzisotops, gemessen werden konnten. Die Hauptquelle der Meßfehler liegt in der relativ hohen Drift des das 2-GHz-Etalon stabilisierenden He-Ne-Lasers von ca. 5 MHz/h, wodurch auch die Stabilität des Referenzlasers nur in diesen Werten gegeben ist.

Der Spektrum-Analysator besitzt einen variablen Oszillator, der durch ein elektronisches Analogsignal auf eine feste Soll-offset-Frequenz von außen eingestellt werden kann. Zusätzlich kann dieser variable Oszillator um die so eingestellte Mittenfrequenz gewobelt werden. Das vom Spektrum-Analysator erfaßte Frequenzintervall wird dazu so eingestellt, daß die Soll-offset-Frequenz gerade in seiner Mitte liegt, während sein Wobbelhub so groß gewählt wird, daß die wie die Laserfrequenz schwankende Differenzfrequenz den dargestellten Bereich nicht allzu oft verläßt. Da das so eingestellte Intervall im Spektrum-Analysator periodisch überstrichen wird, kann

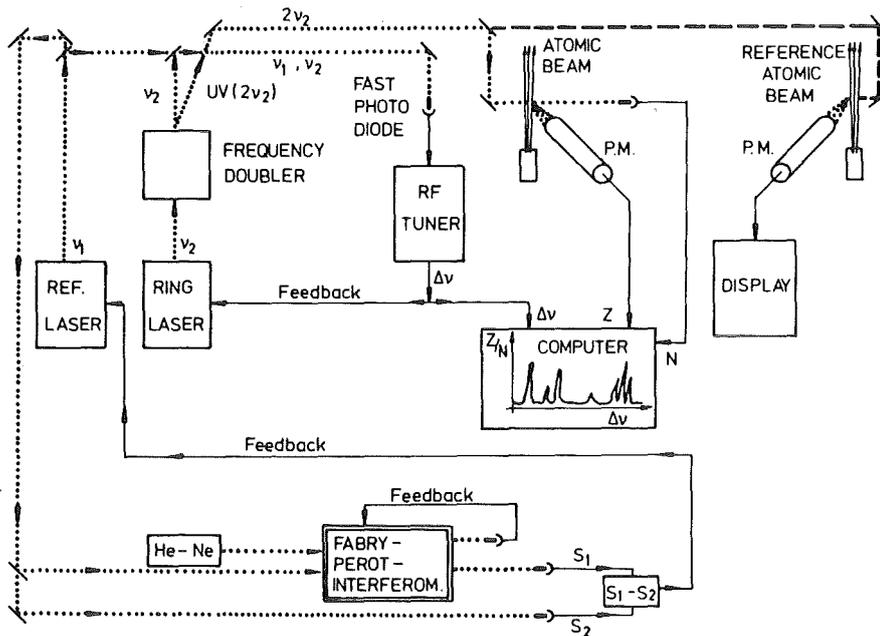


Fig. 2.4: Schematischer Experimentaufbau für das Heterodyn-Verfahren. Der rechte Teil des Bildes umfaßt die Einstrahlung des UV-Lichts in die Atomstrahlapparatur. Der zweite Atomstrahl diente lediglich dem leichteren Auffinden der Resonanzen der stabilen Isotope. Der linke Teil stellt das Lasersystem, die Frequenzstabilisierungen und die Frequenzdurchstimmung dar.

man ihm ein Signal entnehmen, das die momentane Lage der Laser-Differenzfrequenz innerhalb des Intervalls enthält; durch geeignete phasenempfindliche Gleichrichtung dieses Signals läßt sich feststellen, ob sie oberhalb oder unterhalb der Intervallmitte liegt, und daraus ein Korrektursignal bilden. Wird dieses Korrektursignal auf den Farbstoff-Ringlaser gegeben, so kann dieser auf eine bestimmte Differenzfrequenz bezüglich des Referenzlasers aktiv geregelt werden. Eine von außen vornehmbare Veränderung der Soll-offset-Frequenz "zieht" somit diesen Farbstofflaser um die gleiche Frequenzänderung mit, wodurch ein Frequenzgebiet mit einer Geschwindigkeit von ca. 1 MHz/s überstrichen werden kann. Die Wobelfrequenz beträgt 2 kHz, der Wobbelbereich  $\pm 10$  MHz symmetrisch zur Mittenfrequenz.

Die Eichung der Frequenzskala des Spektrums erfolgt mit einem hochstabilen und genauen Frequenzgenerator (Hewlett Packard, Modell 8406A), der viele äquidistante Linien mit wahlweise 1 MHz, 10 MHz oder 100 MHz Frequenzabstand erzeugt. Dieses Linienspektrum wird statt des Mischungssignals der beiden Laser in den Spektrum-Analysator gegeben.

Mit einem NOVA-2-Kleinrechner werden sowohl das Experiment gesteuert als auch die Daten erfaßt. Über ein CAMAC-System ist der Rechner an das Experiment gekoppelt. Die einzelnen Komponenten sind aus der Fig. 2.5 ersichtlich. Zur Aufnahme der Spektren verändert der Rechner synchron sowohl den Meßlaser um ungefähr den richtigen Betrag zur Entlastung und Beschleunigung der Regelung ("feed-forward") als auch die Soll-offset-Frequenz des Spektrum-Analysators, um die dieser Laser auf eine bestimmte Differenzfrequenz geregelt wird. Die Spektren sind jeweils auf die Laserintensität normiert, d.h. die Zähler sperren immer nach demselben integralen Laserlicht.

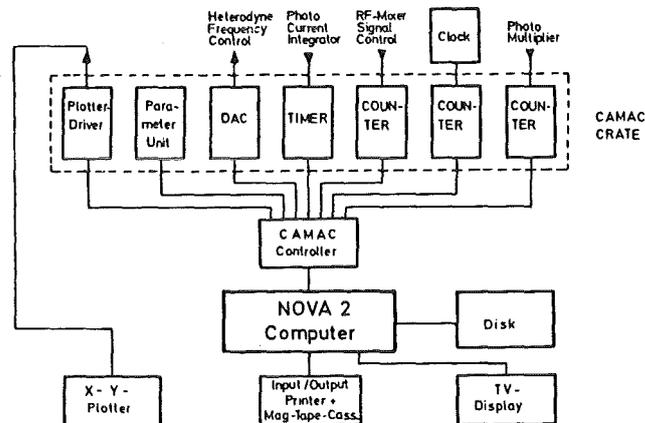


Fig. 2.5: Blockschaltbild der Experimentsteuerung und der Datenerfassung

### 2.5.3 Das Seitenband-Verfahren

Zwischen den Pb- und Sn-Messungen erfolgte eine Umstellung der Meßmethode auf das sogenannte Seitenbandverfahren. Der Reiz für diese Umstellung lag in der Reduzierung der Anzahl der Laser von vier auf nur noch einen Farbstoff- und einen  $\text{Ar}^+$ -Laser; neben Kostenersparnissen ergabsich dadurch auch eine Verringerung der Justierzeiten sowie eine Reduktion der Ausfallzeiten aufgrund von Laserdefekten.

Kernstück der Seitenbandmethode ist ein ADP-Kristall, der die Polarisation von eingestrahlttem Licht in Abhängigkeit von einer angelegten Spannung dreht. Charakteristischer Wert für die anzulegende Spannung ist die sogenannte  $\lambda/2$ -Spannung, bei der eine Drehung der Polarisation um  $90^\circ$  erreicht wird. Der von uns verwendete bis zu 2 GHz modulierbare Kristall (Lasermetrics, Modell 1080) benötigt hierfür eine Spannung von 3600 V.

Unter Benutzung einer hochfrequenten Modulationsspannung

$$U(t) = U_0 \cos 2\pi \nu_{\text{rf}} t \quad (2.1)$$

ergibt sich für die den 2. Polarisator verlassende Lichtwelle bei gekreuzten Polarisatoren aufgrund der unterschiedlichen optischen Weglängen für die beiden Polarisationskomponenten des Lichts entlang der Achsen des Kristalls /MEI 78/:

$$E(t) = E_0 \frac{\pi \cdot \eta \cdot U_0}{2\lambda} (\sin 2\pi(\nu_{\text{dye}} + \nu_{\text{rf}})t - \sin 2\pi(\nu_{\text{dye}} - \nu_{\text{rf}})t) \quad (2.2)$$

- $E_0$  : Amplitude der Eingangslichtwelle  
 $\eta$  : Proportionalitätskonstante  
 $U_0$  : Amplitude der angelegten hochfrequenten Wechselspannung

Die leichte Divergenz des Laserstrahls und eine nicht ideale Kreuzung der Polarisatoren lassen geringe Anteile der eingestrahnten Lichtfrequenz neben den oben schon auftretenden Seitenfrequenzen

$\nu_{\text{dye}} + \nu_{\text{rf}}$  und  $\nu_{\text{dye}} - \nu_{\text{rf}}$  erneut auftauchen, so daß die drei Frequenzen in der austretenden Lichtwelle enthalten sind:

$$E(t) = E_0 \frac{\pi \cdot \eta \cdot U_0}{2\lambda} \left( m \cdot \sin 2\pi \nu_{\text{dye}} t + \sin 2\pi (\nu_{\text{dye}} + \nu_{\text{rf}}) t - \sin 2\pi (\nu_{\text{dye}} - \nu_{\text{rf}}) t \right) \quad (2.3)$$

$m$  : Faktor, der der Güte der Unterdrückung der Trägerfrequenz  $\nu_{\text{dye}}$  entspricht.

Beim Anlegen einer hochfrequenten Wechselspannung mit  $\nu_{\text{rf}}$  an den Kristall und unter Benutzung zweier gekreuzter Polarisatoren vor und hinter dem Kristall können somit über die dabei erfolgende Amplitudenmodulation hinter dem zweiten Polarisator neben der eingestrahlten, unmodulierten Laserfrequenz ( $\nu_{\text{dye}}$ , Trägerfrequenz) zwei Seitenfrequenzen ( $\nu_{\text{ls}}$ ,  $\nu_{\text{rs}}$ ) produziert werden (vgl. auch Fig. 2.6).

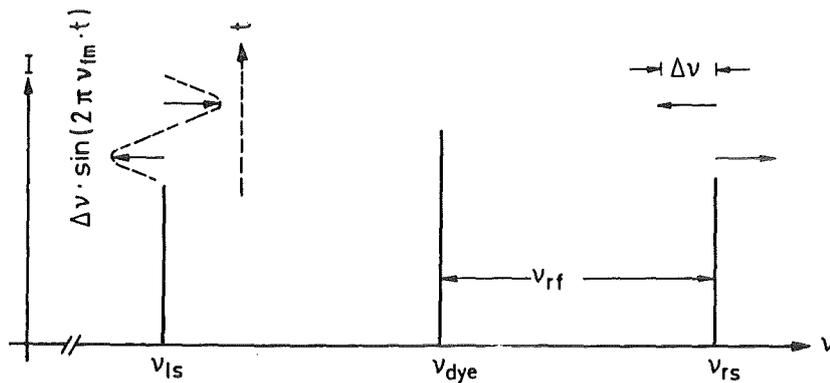


Fig. 2.6: Frequenzspektrum amplitudenmodulierten Lichts. Die linke Seitenfrequenz  $\nu_{\text{ls}}$  und die rechte Seitenfrequenz  $\nu_{\text{rs}}$  sind um die Hochfrequenz  $\nu_{\text{rf}}$  von der Trägerfrequenz  $\nu_{\text{dye}}$  verschoben. Die gestrichelte Sinuskurve zeigt die Zeitabhängigkeit z.B. des linken Seitenbandes, wenn eine zusätzliche Frequenzmodulation  $\nu_{\text{fm}}$  der Hochfrequenz  $\nu_{\text{rf}}$  vorgenommen wird. Die kleinen horizontalen Pfeile bei  $\nu_{\text{ls}}$  und  $\nu_{\text{rs}}$  zeigen an, wie diese zusätzliche Frequenzmodulation  $\nu_{\text{fm}}$  eine zueinander gegenphasige Verschiebung der beiden Seitenbänder verursacht.

Der Abstand der Seitenfrequenzen relativ zur eingestrahlten Laserfrequenz ist exakt so groß wie die Frequenz der angelegten Wechselspannung ( $\nu_{ls} = \nu_{dye} - \nu_{rf}$ ;  $\nu_{rs} = \nu_{dye} + \nu_{rf}$ ). Die Intensität der Seitenfrequenzen variiert mit der Amplitude der angelegten Wechselspannung.

Das beste Verhältnis von Träger- zu Seitenbandintensität wird über eine optimale  $90^\circ$ -Kreuzung der beiden Polarisatoren hergestellt, so daß fast nur moduliertes Licht hinter dem zweiten Polarisator austritt. Es konnte ein Träger-zu-Seitenband-Verhältnis von 1 : 5 hinter einem 2-GHz-Interferometer in Modenanpassung bei fester Hochfrequenz erreicht werden. Die Änderung der Hochfrequenz brachte jedoch nicht nur eine andere Seitenbandintensität bis zu einem Faktor 3 mit sich, sondern auch eine Veränderung der Kristalltemperatur, so daß sich die Intensität der Trägerfrequenz um bis zu einen Faktor 30 vergrößern konnte.

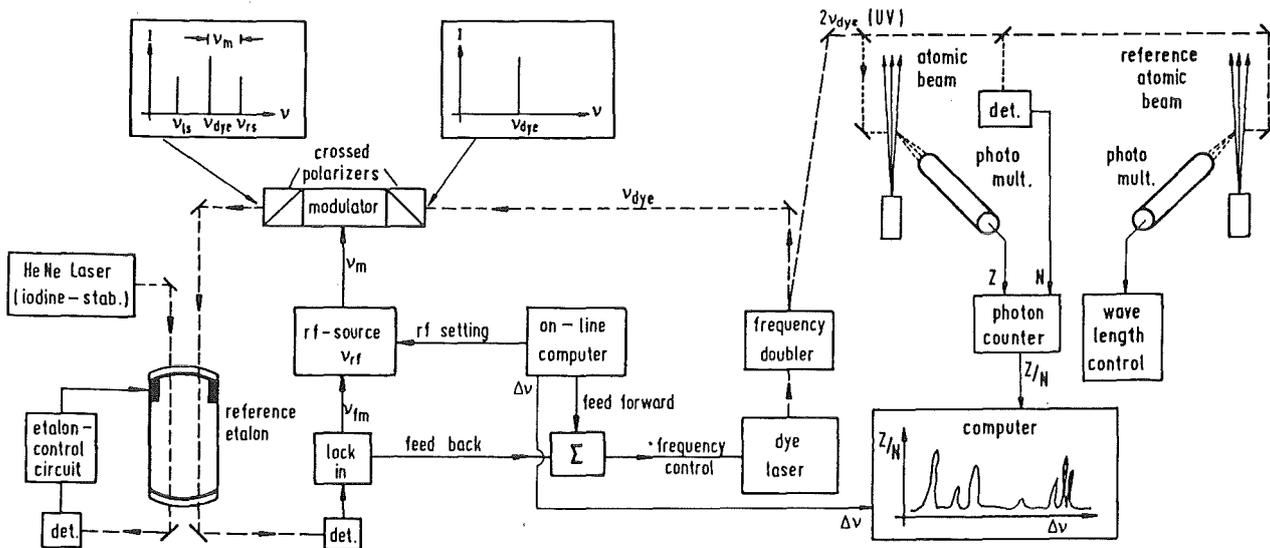


Fig. 2.7: Schematischer Experimentaufbau für das Seitenband-Verfahren. Der rechte Teil des Bildes zeigt die Einstrahlung des UV-Lichts in die Atomstrahlapparatur. Der linke Teil stellt die Stabilisierung und Durchstimmung des Lasersystems dar.

Eine zusätzliche periodische Frequenzmodulation  $\nu_{fm}$  der angelegten Hochfrequenz  $\nu_{rf}$  unter Benutzung eines phasenempfindlichen Gleichrichters ("Lock-in"-Verstärker) auf der Frequenz dieser zusätzlichen Frequenzmodulation läßt diesen "Lock-in" alle drei Lichtfrequenzen deutlich unterscheiden: Die Trägerfrequenz besitzt überhaupt keine derartige Modulation und die Frequenzmodulation der beiden Seitenbänder ist (siehe Gl. 2.3) um  $180^\circ$  gegeneinander phasenverschoben (Fig. 2.6).

Durch eine Umschaltung der Steuerung des phasenempfindlichen Gleichrichters um  $180^\circ$  war damit bei der Messung eine schnelle Identifikation der Seitenbänder möglich. Tatsächlich wurde auf den Kristall also eine Wechselspannung mit folgendem Zeitverlauf gegeben:

$$U_0 \sin 2\pi (\nu_{rf} + \Delta\nu_{rf} \sin 2\pi \nu_{fm})t = U_0 \sin 2\pi \nu_m(t) \cdot t \quad (2.4)$$

$\nu_{rf}$  konnte mit einem rechnergesteuerten Sender (Wavetek, Modell 3010) zwischen 0 und 1 GHz variiert werden.  $\nu_{fm}$  betrug 3 kHz mit einer Spannung von  $4V_{SS}$ , was einem Hub in  $\Delta\nu_{rf}$  von ca. 4 MHz entsprach und im Sender mit  $\nu_{rf}$  zu  $\nu_m$  gekoppelt werden konnte. Nach anschließender Verstärkung (Amplifier Research, Modell 5W1000) betrug  $U_0 = 22 V_{SS}$ .

Die Seitenbandfrequenzen können nun in verschiedener Weise für fehlerfreies Lasertuning benutzt werden /BUR 79/. Für die hier beschriebenen Messungen wurde eines der beiden Seitenbänder nach dem Ausfiltern des anderen Seitenbandes und des Trägers über ein 2-GHz-Etalon mit einem 300-MHz-Referenzetalon frequenz-stabilisiert. Dieses 300-MHz-Etalon war wiederum an einen Jod-stabilisierten He-Ne-Laser angebunden (Fig. 2.7).

Das Regelsignal aus der Seitenbandstabilisierung wurde auf den Farbstoff-Ringlaser geleitet. Neben dieser Stabilisierung des Ringlasers wurde außerdem seine Durchstimmung ermöglicht, da eine Änderung der Hochfrequenz  $\nu_{rf}$  über die Frequenzfixierung eines der beiden Seitenbänder in eine Änderung von  $\nu_{dye}$  umgewandelt wurde (Folgeregelung). Um die Regelung zu beschleunigen und zu entlasten, wurde aus dem Rechner neben dem Wert für  $\nu_{rf}$  in den Sender gleichzeitig eine diesem Wert entsprechende Spannung in den Farbstoff-

Ringlaser gegeben, die ihn ungefähr um die gewünschte Frequenz vorab verstellen sollte ("feed-forward") (Fig. 2.8). Mit  $v_{rf} \leq 1$  GHz konnte der Laser kontinuierlich über ein Frequenzgebiet von 1 GHz durchgestimmt werden. Das bedeutete hinter der Verdopplung im UV-Bereich bereits 2 GHz, was mit einem Wechsel der Seitenbänder bequem auf 4 GHz ausgedehnt werden konnte. Dadurch ließen sich im Falle des Sn fast alle Isotope mit  $^{120}\text{Sn}$  als Referenz ohne Zwischenreferenzen messen.

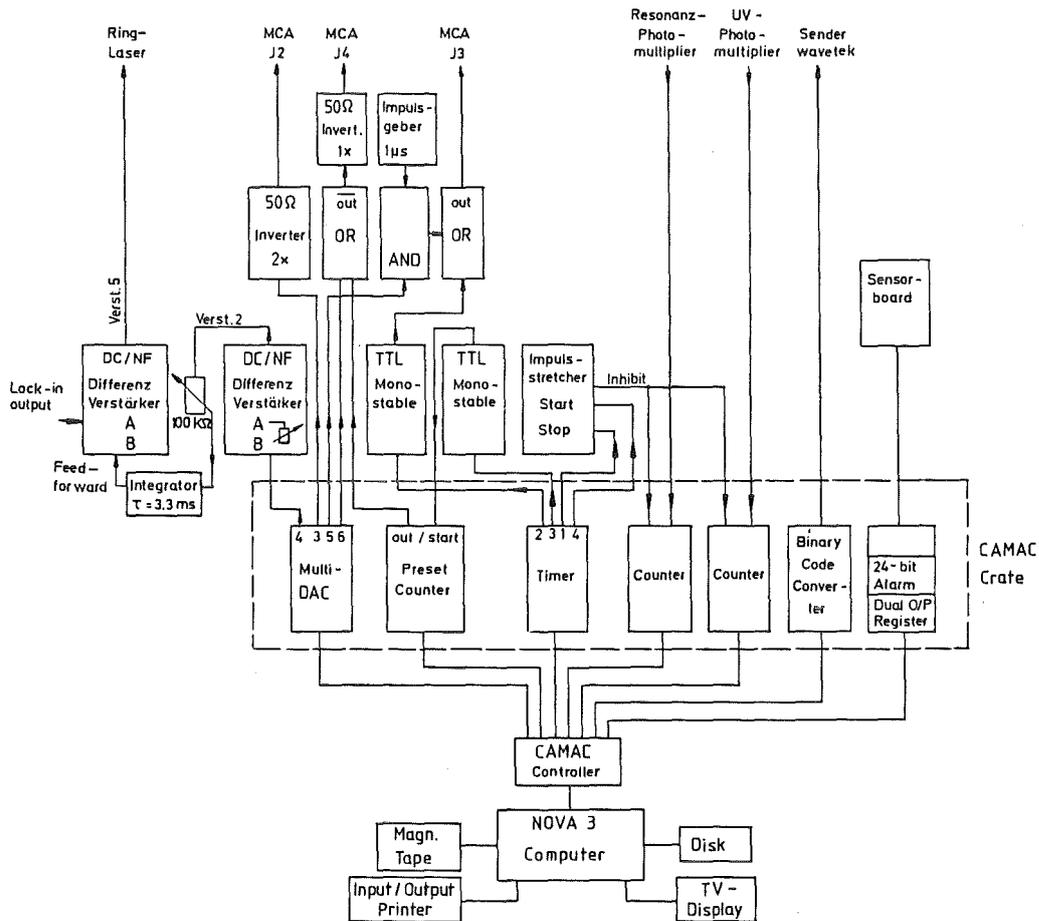


Fig. 2.8: Blockschaltbild der Experimentsteuerung und der Datenerfassung (MCA: Vielkanalanalysator)

Experimentsteuerung und Datenerfassung wurden über ein CAMAC-System an einen NOVA-3-Kleinrechner gekoppelt (Fig. 2.8). Dabei wurde darauf geachtet, daß die Totzeit relativ zur Meßzeit gering war. Die Totzeit beträgt mit einem uncompileden

Basic-5-Programm 60 msec pro Meßpunkt, während von 150 msec an aufwärts jede beliebige Meßzeit pro Meßpunkt zur Verfügung steht. Eine Resonanz kann sowohl im Vor- als auch im Rücklauf aufgenommen werden. Die Meßdaten werden während der Messung zuerst in einem externen Kernspeicher abgelegt, um erst anschließend unter gleichzeitigem Ausdrucken eines Protokolls intensitätsnormiert und aufgearbeitet zu werden. Die bildliche Darstellung der Spektren erfolgt parallel zur Messung extern über eine Steuerung des Vielkanalanalysators (MCA).

Die beiden benutzten Meßmethoden, Heterodyn-Verfahren und Seitenband-Verfahren, haben unterschiedliche Vor- und Nachteile. Das Heterodyn-Verfahren ist in der Lage, große Frequenzgebiete zu überfahren, da Photodioden mit bis zu 20 GHz Mischfrequenz /BEB 79/ erhältlich sind. Noch höhere Mischfrequenzen mit sog. MIM-Dioden nachzuweisen, ist zwar möglich, erfordert jedoch längere Integrationszeiten und die Reproduzierbarkeit ist nicht befriedigend /DAN 81, DAN 82, DAN 83/. Unbefriedigend war bei dem von uns verwendeten Spektrum-Analysatortyp (Hewlett Packard, Modell 8555 A) die Reproduzierbarkeit der von außen über eine Analogspannung einstellbaren Soll-offset-Frequenz des internen variablen Oszillators. Vor- und Rückläufe dieser Oszillator-Einstellung erbrachten eine Hysterese von bis zu 1 MHz, was zu falschen Laserfrequenzen führt. Als Alternative besteht die allerdings z.Z. noch extrem aufwendige Möglichkeit, einen Hochfrequenz-Spektrumanalysator zu verwenden, bei dem die Soll-offset-Frequenz des benutzten Intervalls nach dem Synthesizer-Prinzip, also fehlerfrei, festgelegt wird. Es bleiben allerdings die größeren Schwierigkeiten in der Bändigung von zwei Farbstofflaser-Systemen. Demgegenüber besteht das Seitenbandverfahren in seiner Beschränkung auf nur ein Farbstofflaser-System. Der eindeutige Nachteil des Seitenbandverfahrens liegt in seinem begrenzten Frequenzgebiet von z.Z. nur 1 - 2 GHz. Die benötigten hohen Modulationsspannungen bei solch hohen Frequenzen stellen die derzeitigen Grenzen in der Hochfrequenzverstärkung dar. Jedoch zeichnen sich Kristallentwicklungen ab, die mit wesentlich geringeren Spannungen modulierbar sind.

3. HERSTELLUNG DER PRÄPARATE

Pb 196 37 m c y 592-603 0	Pb 197 42 m c y 298 122 173 1,45	Pb 198 2,40 h c y 290 173 0	Pb 199 12 m 15 h c y 290 173 1,45	Pb 200 215 h c y 149 257 238 268...	Pb 201 61 s 184 h c y 149 257 238 268...	Pb 202 3,29 h c y 149 257 238 268...	Pb 203 8,21 h 521 h c y 149 257 238 268...	Pb 204 14 c y 149 257 238 268...	Pb 205 1,4 · 10 <sup>7</sup> a c y 149 257 238 268...	Pb 206 24,1 c y 149 257 238 268...	Pb 207 22,1 c y 149 257 238 268...	Pb 208 52,4 c y 149 257 238 268...	Pb 209 3,26 h c y 149 257 238 268...	Pb 210 22,3 a c y 149 257 238 268...	Pb 211 36,1 m c y 149 257 238 268...	Pb 212 10,64 h c y 149 257 238 268...	Pb 213 10,2 m c y 149 257 238 268...	Pb 214 26,8 m c y 149 257 238 268...		
Tl 195 3,81 h 12 h c y 298 122 173 1,45	Tl 196 14 h 18 h c y 298 122 173 1,45	Tl 197 2,84 h c y 298 122 173 1,45	Tl 198 1,87 h 5,3 h c y 298 122 173 1,45	Tl 199 7,42 h c y 298 122 173 1,45	Tl 200 26,1 h c y 298 122 173 1,45	Tl 201 73,5 h c y 298 122 173 1,45	Tl 202 12,2 d c y 298 122 173 1,45	Tl 203 29,6 c y 298 122 173 1,45	Tl 204 3,78 a c y 298 122 173 1,45	Tl 205 70,5 c y 298 122 173 1,45	Tl 206 4,20 m c y 298 122 173 1,45	Tl 207 13,1 h 4,8 m c y 298 122 173 1,45	Tl 208 3,054 m c y 298 122 173 1,45	Tl 209 2,2 m c y 298 122 173 1,45	Tl 210 13 m c y 298 122 173 1,45				132	
Hg 194 ≥ 15 a c y 298 122 173 1,45	Hg 195 40 h 1,5 h c y 298 122 173 1,45	Hg 196 0,15 c y 298 122 173 1,45	Hg 197 23,8 h 641 h c y 298 122 173 1,45	Hg 198 10,1 c y 298 122 173 1,45	Hg 199 42,6 m 16,9 c y 298 122 173 1,45	Hg 200 23,1 c y 298 122 173 1,45	Hg 201 13,2 c y 298 122 173 1,45	Hg 202 29,7 c y 298 122 173 1,45	Hg 203 46,8 d c y 298 122 173 1,45	Hg 204 6,8 c y 298 122 173 1,45	Hg 205 5,2 m c y 298 122 173 1,45	Hg 206 8,2 m c y 298 122 173 1,45							128	130

Fig. 3.1: Ausschnitt aus der Isotopenkarte für Pb und der als Targetmaterial benutzten Elemente

Sn 110 4,0 h c y 298 122 173 1,45	Sn 111 35,3 m c y 115 5 1914 761 1610 ...	Sn 112 1,0 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Sn 113 20 m 151 d c y 115 5 1914 761 1610 ...	Sn 114 0,66 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Sn 115 0,35 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Sn 116 14,4 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Sn 117 14,0 d 7,6 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Sn 118 24,1 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Sn 119 245 d 8,6 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Sn 120 32,8 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Sn 121 ~50 a 27,0 h c y 115 5 1914 761 1610 ...	Sn 122 4,7 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Sn 123 401 m 128,2 d c y 115 5 1914 761 1610 ...	Sn 124 5,8 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Sn 125 85 m 1864 d c y 115 5 1914 761 1610 ...	Sn 126 ~10 <sup>9</sup> a c y 115 5 1914 761 1610 ...
In 109 1,34 m 4,2 h c y 115 5 1914 761 1610 ...	In 110 4,9 h 691 m c y 115 5 1914 761 1610 ...	In 111 7,8 m 2,83 d c y 115 5 1914 761 1610 ...	In 112 20,8 m 14,4 m c y 115 5 1914 761 1610 ...	In 113 49,5 d 23 c y 115 5 1914 761 1610 ...	In 114 49,5 d 23 c y 115 5 1914 761 1610 ...	In 115 95,7 6 · 10 <sup>7</sup> a c y 115 5 1914 761 1610 ...	In 116 22,1 s 18 s c y 115 5 1914 761 1610 ...	In 117 1,85 h 38 m c y 115 5 1914 761 1610 ...	In 118 8,5 s 44 m 51 s c y 115 5 1914 761 1610 ...	In 119 18 m 23 m c y 115 5 1914 761 1610 ...	In 120 44 s 3,9 s c y 115 5 1914 761 1610 ...	In 121 3,8 m 25 s c y 115 5 1914 761 1610 ...	In 122 10,0 s 15 s c y 115 5 1914 761 1610 ...	In 123 47,8 s 6 s c y 115 5 1914 761 1610 ...	In 124 3,2 s c y 115 5 1914 761 1610 ...	In 125 12,2 s 2,3 s c y 115 5 1914 761 1610 ...
Cd 108 0,9 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Cd 109 453 d c y 115 5 1914 761 1610 ...	Cd 110 12,4 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Cd 111 49 m 12,8 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Cd 112 24,0 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Cd 113 12,3 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Cd 114 28,8 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Cd 115 44,8 d 53,2 h c y 115 5 1914 761 1610 ...	Cd 116 7,6 c y 115 5 1914 761 1610 ...	Cd 117 3,31 h 242 h c y 115 5 1914 761 1610 ...	Cd 118 50,3 m c y 115 5 1914 761 1610 ...	Cd 119 1,9 m 2,6 m c y 115 5 1914 761 1610 ...	Cd 120 50,8 s c y 115 5 1914 761 1610 ...	Cd 121 4,8 s 12,8 s c y 115 5 1914 761 1610 ...	Cd 122 5,5 s c y 115 5 1914 761 1610 ...		

Fig. 3.2: Ausschnitt aus der Isotopenkarte für Sn und der als Targetmaterial benutzten Elemente

Wie anhand der Tabelle 3.1 ersichtlich, wurden die instabilen Isotope mit verschiedenen Verfahren produziert: Einmal über Neutroneneinfang oder durch Kernreaktionen mit geladenen Teilchen. Da in der Regel auch benachbarte Isotope erzeugt wurden, war es wegen der kleinen Isotopieverschiebungen bei gleichzeitig aber langen Ausläufern atomarer Resonanzlinien notwendig, das gewünschte Isotop abzutrennen. Außerdem sollen störende, natürlich vorkommende Isotope unterdrückt werden, wobei die Isotope in atomarer Form vorliegen müssen. Deshalb wurde zur Herstellung der Präparate für den Atomstrahl ein elektromagnetischer Massenseparator /FAB 65, FAB 66/ benutzt, dessen Wirkungsgrad zwischen 5 und 10 % lag.

Tab. 3.1: Übersicht über die Isotopenproduktion.

Zykl. steht für das Karlsruher Isochron-Zyklotron. FR2 ist der mittlerweile stillgelegte Karlsruher Forschungsreaktor. Merlin und Dido sind Jülicher Reaktoren. Die Neutronenflüsse der Reaktoren betragen  $1 - 2 \cdot 10^{14}$

$\frac{n}{\text{cm}^2 \text{ s}}$ . Die Massentrennung fand ebenfalls in Karlsruhe an einem elektromagnetischen Massentrenner statt. Zusätzlich angeführt sind die so erhaltenen Probenmengen, mit denen die Laserspektrometrischen Messungen durchgeführt wurden.

A	Grundzustand	Halbwertszeit	Produktionsmechanismus	Ort	erzielte Probenmenge	mit Massentrennung
Pb						
196		37 m	$^{198}\text{Hg}(\alpha, 6n) ^{196}\text{Pb}$	Zykl.	104 pg	x
197	$3p_{3/2}^-$	8 m	$^{197m}\text{Pb} \xrightarrow{\text{I.T.}} ^{197}\text{Pb}$		30 pg	
197m	$1i^{+13/2}$	43 m	$^{198}\text{Hg}(\alpha, 5n) ^{197m}\text{Pb}$	Zykl.	97 pg	x
198		2,4 h	nat. $\text{Hg}(\alpha, xn) ^{198}\text{Pb}$	Zykl.	194 pg	x
199	$3p_{3/2}^-$	1,5 h	nat. $\text{Hg}(\alpha, xn) ^{199}\text{Pb}$	Zykl.	720 pg	x
200		21,5 h	$^{203}\text{Tl}(d, 5n) ^{200}\text{Pb}$	Zykl.	4,4 ng	x
201	$2f_{5/2}^-$	9,4 h	$^{203}\text{Tl}(d, 4n) ^{201}\text{Pb}$	Zykl.	1,8 ng	x
202		$3 \cdot 10^5 \text{ a}$	$^{206}\text{Pb}(d, 6n) ^{202}\text{Bi} \xrightarrow{\text{E.C.}} ^{202}\text{Pb}$	Zykl.	3 ng	x
202m	$9^-$	3,62 h	nat. $\text{Hg}(\alpha, xn) ^{202m}\text{Pb}$	Zykl.	890 pg	x
203	$2f_{5/2}^-$	51,9 h	$^{205}\text{Tl}(d, 4n) ^{203}\text{Pb}$	Zykl.	2,5 ng	x
204		$1,4 \cdot 10^{17} \text{ a (stabil)}$			20 ng	x
205	$2f_{5/2}^-$	$1,5 \cdot 10^7 \text{ a}$	$^{204}\text{Pb}(n, \gamma) ^{205}\text{Pb}$	Fr 2	16 ng	x
206		stabil			20 ng	x
207	$3p_{1/2}^-$	stabil			20 ng	x
208		stabil			20 ng	x
209	$2g_{9/2}^+$	3,253 h	$^{208}\text{Pb}(d, p) ^{209}\text{Pb}$	Zykl.	200 pg	x
210		22,3 a	Zerfall $^{238}\text{U}(\text{RaD})$	gekauft	10 ng	x
212		10,64 h	Zerfall $^{228}\text{Th}(\text{ThB})$	Th (5 mci) gekauft	50 pg	x
214		26,8 m	Zerfall $^{226}\text{Ra}(\text{RaB})$	Ra (5 mci) gekauft	20 pg	x
Sn						
110		4 h	$^{111}\text{Cd}(\alpha, 5n) ^{110}\text{Sn}$	Zykl.	500 pg	
112		stabil			200 ng	x
113	$3s_{1/2}^+$	115,1 d		gekauft	189 pg	x
114		stabil			200 ng	x
115	$3s_{1/2}^+$	stabil			200 ng	x
116		stabil			200 ng	x
117	$3s_{1/2}^+$	stabil			200 ng	x
117m	$1h_{11/2}^-$	13,6 d	$^{116}\text{Cd}(\alpha, 3n) ^{117m}\text{Sn}$	Zykl.	2 ng	x
118		stabil			200 ng	x
119	$3s_{1/2}^+$	stabil			200 ng	x
120		stabil			200 ng	x
121	$3d_{3/2}^+$	27,0 h	$^{120}\text{Sn}(n, \gamma) ^{121}\text{Sn}$	Merlin	220 pg	x
121m	$1h_{11/2}^-$	50 a	$^{120}\text{Sn}(n, \gamma) ^{121m}\text{Sn}$	Dido	1,8 ng	x
122		stabil			200 ng	x
123	$1h_{11/2}^-$	129,2 d	$^{122}\text{Sn}(n, \gamma) ^{123}\text{Sn}$	Merlin	520 pg	x
124		stabil			200 ng	x
125	$1h_{11/2}^-$	9,6 d	$^{124}\text{Sn}(n, \gamma) ^{125}\text{Sn}$	Merlin	134 pg	x

Bei der Massentrennung wurden die Isotope direkt mit dem Tiegel aufgefangen. Er bestand für Pb aus Molybdän, während für Sn der Übergang auf Graphit notwendig wurde, weil dieses bei den höheren Temperaturen weder chemisch reagiert, noch seine Struktur oder Form verändert. Alle Tiegel konnten sofort in die Atomstrahlapparatur eingeführt werden, was eine schnelle Messung nach der Probenherstellung ermöglichte. Vor einer Massentrennung wurden die bestrahlten Targets von ihrer Target-Ausgangssubstanz entweder chemisch getrennt (Tl) oder abdestilliert (Hg, Cd). Auf eine Massentrennung wurde verzichtet, wenn die erwarteten Resonanzen instabiler Isotope weit genug von störenden Resonanzen stabiler oder mitproduzierter Isotope entfernt lagen. Dieser Verzicht brachte mindestens eine Größenordnung mehr Probenmaterial. Die Proben enthielten typischerweise einige hundert Pikogramm bis einige Nanogramm der gewünschten Isotope. Die kleinste Probe enthielt ca. 20 pg ( $^{214}\text{Pb}$ ), wobei der Atomstrahl nur 10 Sekunden anhielt.

#### 4. MESSERGEBNISSE

Die Abbildungen 4.1 bis 4.4 stellen Spektren dar, die mit Hilfe der drei verschiedenen Meßmethoden erzielt wurden, sowie ein Beispiel einer Isomerieverschiebung

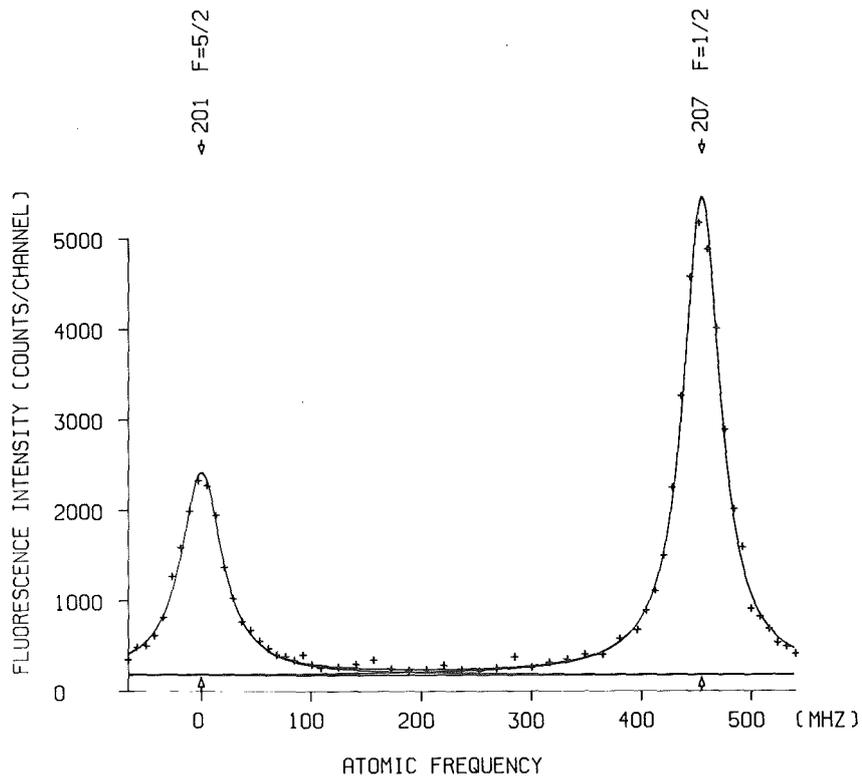


Fig. 4.1: Spektrum von 1,2 ng  $^{201}\text{Pb}$  und  $^{207}\text{Pb}$ , aufgenommen mit dem Heterodyn-Verfahren

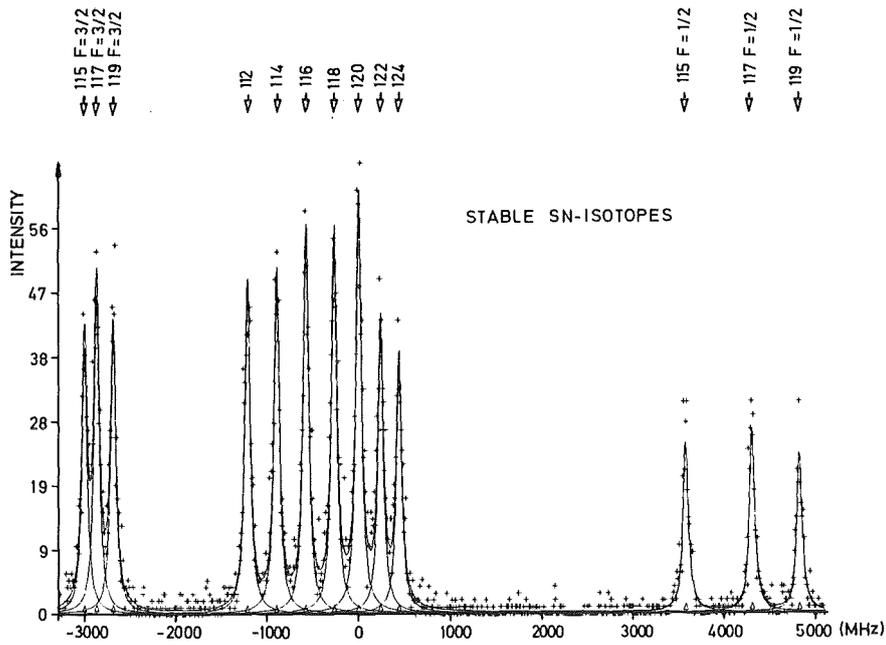


Fig. 4.2: Spektrum von stabilem Sn, auf 500 pg je Isotop angereichert, aufgenommen mit dem Vielkanal-Verfahren

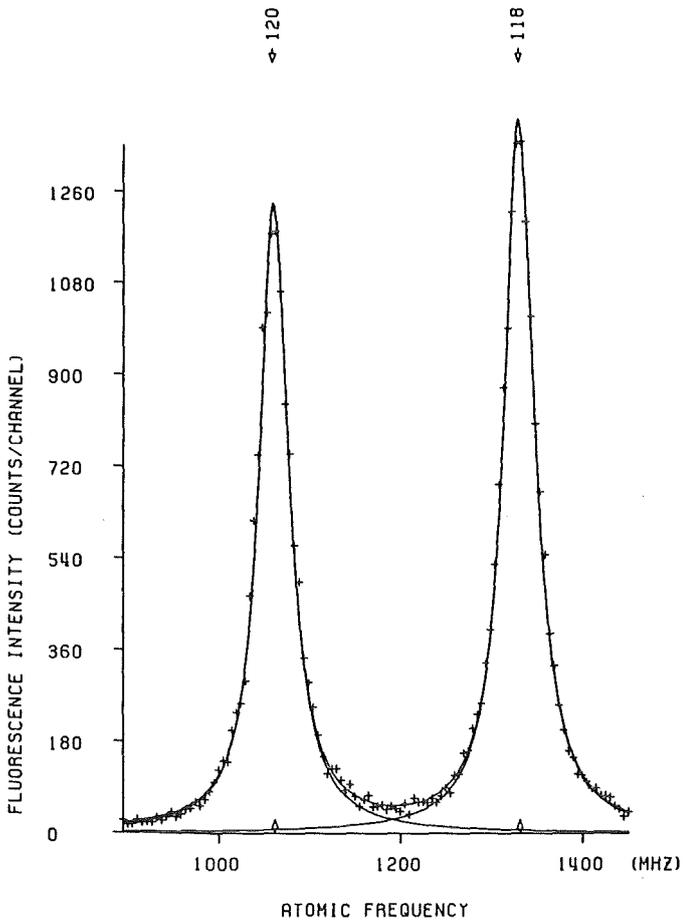


Fig. 4.3: Spektrum von je 200 ng  $^{118}\text{Sn}$  und  $^{120}\text{Sn}$ , aufgenommen mit dem Seitenband-Verfahren im Vorlauf bei Stabilisierung des rechten Seitenbandes.

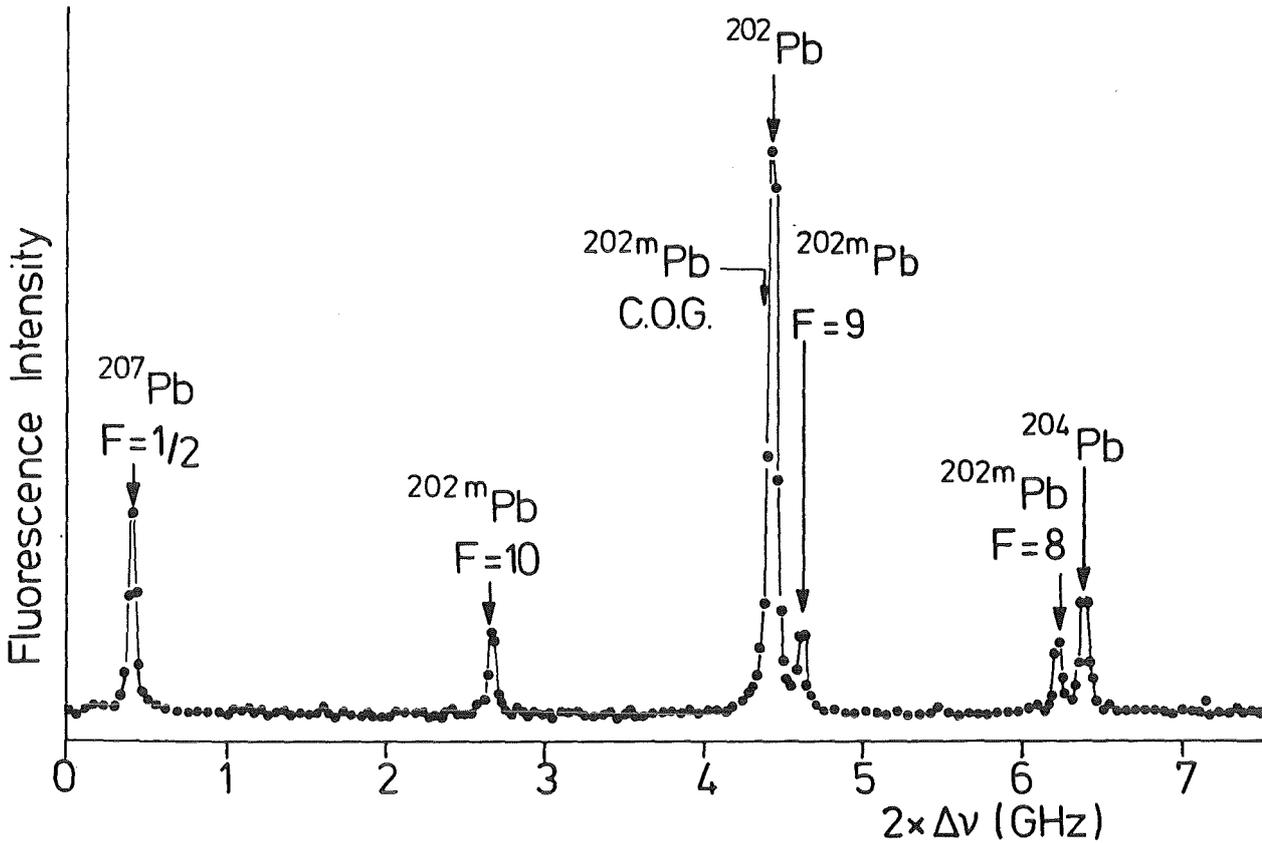


Fig. 4.4: Isomerieverschiebung von 890 pg  $^{202m}\text{Pb}$  und  $^{202}\text{Pb}$ , aufgenommen mit dem Vielkanal-Verfahren

Die erreichten Resonanzlinienbreiten betragen für die stabilen Isotope im Normalfall zwischen 40 und 45 MHz für Pb und 40 bis 50 MHz für Sn. Sie setzen sich zusammen aus der natürlichen Linienbreite der Übergänge (28 MHz bei Pb, 32 MHz bei Sn), einer Dopplerverbreiterung von ca. 20 MHz und einer Halbwertsbreite des UV-Lichts von ca. 2 MHz.

Die gemessenen Spektren wurden auf der IBM-Rechenanlage des Kernforschungszentrums Karlsruhe einem Fit nach dem Verfahren der kleinsten Fehlerquadrate /SCH 73/ unterzogen. Freie Parameter waren Linienbreite, ein konstanter Untergrund sowie für jede Linie die Lage und Höhe. Für bekannte Linien (z.B. natürliche Isotope) konnte wahlweise die Lage und/oder die Höhe festgehalten werden, um eine schnellere Konvergenz der Anpassung zu erhalten. In den abgebildeten Spektren (Fig. 4.1 bis 4.4) sind als durchgezogene Linien Ergebnisse des Fits eingezeichnet. Der Signaluntergrund

betrug in der Regel zwischen 30 und 60 Hz, je nach Stärke des  $\gamma$ -Untergrunds. Bei den Heterodyn-Messungen betrug er zwischen 150 und 350 Hz, was hauptsächlich in der Verwendung von Farbglassfiltern statt Interferenzfiltern begründet lag (siehe Kap. 2.4). Die Zählrate in der Resonanzmitte betrug beim Heterodyn- und beim Seitenbandverfahren unter Verwendung starker Proben ( $> 3$  ng) zwischen 10 und 20 kHz. Die Zeit pro Meßpunkt betrug beim Heterodyn-Verfahren in der Regel ca. 1 s, in Abhängigkeit von der eingestrahlten UV-Intensität (Kap. 2.5.2); beim Seitenbandverfahren betrug die Meßzeit immer 150 ms. Die Schrittweiten variierten in beiden Fällen zwischen 5 und 10 MHz.

Wie schon in Kap. 2.5 beschrieben, wurden zuerst die relativen Lagen aller stabilen Isotope gemessen, um einen Satz von Referenzlinien zu erhalten. Die ungeraden Isotope besaßen zwischen zwei und drei Komponenten mit Aufspaltungen von bis zu 25 GHz. Schwierigkeiten mit Überlappungen gab es nur für die Sn-Isotope:  $^{117}\text{m}$ ,  $^{121}$ ,  $^{125}\text{Sn}$ .

In den Tabellen 4.1 und 4.2 sind die Meßergebnisse sämtlicher Isotope und Isomere sowie das jeweils verwendete Meßverfahren aufgeführt. Die Angabe der Linienlagen wurden für Pb auf den doppeltmagischen Kern von  $^{208}\text{Pb}$  bezogen. Im Falle des Sn wurde hierfür  $^{114}\text{Sn}$  aufgrund eines Unterschalenabschlusses ausgewählt.

Die Fehler von einigen MHz im Heterodyn-Verfahren liegen hauptsächlich an dem mit 5 MHz/h nicht sehr stabilen He-Ne-Laser, der zur Frequenzstabilisierung verwendet wurde. Beim Seitenbandverfahren wurde auf einen Jod-stabilisierten He-Ne-Laser mit einer Frequenzstabilität von einigen kHz/h übergegangen. Einige Isotope wurden nur mit Hilfe der Vielkanalmethode gemessen, da die Probenmengen extrem gering waren und/oder einzelne Komponenten weit über 8 GHz von möglichen Referenzisotopen zu liegen kamen. Da diese Methode die ungenaueste der insgesamt verwendeten Meßmethoden war, sind die Fehler auch durchweg um einen Faktor 5 - 10 größer. Große Fehler in den Ergebnissen mit dem Heterodyn-Verfahren liegen zum einen in geringen Intensitäten radioaktiver Isotope begründet, zum anderen in den stellenweise bis zu drei notwendigen Referenzisotopen.

Tab. 4.1: Komponentenlage des Übergangs  $6s^2 6p^2 \ ^3P_0 - 6s^2 6p7s \ ^3P_1$ .  
 In der Spalte "Meßverfahren" steht V für Vielkanal-  
 Verfahren und H für Heterodyn-Technik.

Isotop Pb	I	F	Position [MHz]	Meßver- fahren
196			-11441 (30)	V
197	3/2	5/2	-19391 (30)	V
		3/2	- 6083 (30)	V
		1/2	1927 (30)	V
197m	13/2	15/2	-19048 (30)	V
		13/2	- 9530 (30)	V
		11/2	- 1377 (30)	V
198			- 9848.4 (5.0)	H
199	3/2	5/2	-17733 (15)	V
		3/2	- 4417 (15)	V
		1/2	3545 (15)	V
200			- 8094.1 (3.5)	H
201	5/2	3/2	-14753.1 (8.0)	H
		5/2	- 9736.1 (5.0)	H
		7/2	- 2708.5 (4.0)	H
202			- 6193.7 (3.5)	H
202m	9	10	- 7938.3 (8.0)	V
		9	- 6003.6 (6.0)	V
		8	- 4374.2 (6.0)	V
203	5/2	3/2	-12897.8 (7.0)	V
		5/2	- 7780.3 (6.0)	V
		7/2	- 651.1 (4.0)	V
204			- 4212.0 (2.5)	H
205	5/2	3/2	-11135.8 (5.0)	H
		5/2	- 5807.6 (3.5)	H
		7/2	1570.2 (2.0)	H
206			- 2226.6 (2.5)	H
207	1/2	1/2	-10198.1 (3.0)	H
		3/2	3012.7 (3.0)	H
208			0.0	
209	9/2	11/2	- 9175 (20)	V
		9/2	4180 (15)	V
		7/2	15165 (15)	V
210			3973.7 (3.5)	H
212			7815 (30)	V
214			11503 (20)	V

Tab. 4.2: Komponentenlage des Übergangs  $5s^2 5p^2 \ ^3P_0 - 5s^2 5p6s \ ^3P_1$   
 In der Spalte "Meßverfahren" steht V für Vielkanal-  
 Verfahren und S für Seitenband-Verfahren.

Isotop Sn	I	F	Position [MHz]	Meßver- fahren
110			- 668.3 (7.0)	S
112			- 317.4 (3)	S
113	1/2	1/2	4024.3 (8)	S
		3/2	-2280.5 (1.9)	S
114			0.0	S
115	1/2	1/2	4489.4 (5)	S
		3/2	-2101.8 (3)	S
116			325.2 (3)	S
117	1/2	1/2	5217.5 (8)	S
		3/2	-1962.1 (9)	S
117m	11/2	9/2	4387.3 (3.0)	S
		11/2	995.3 (6.0)	S
		13/2	-2906.6 (8)	S
118			630.6 (8)	S
119	1/2	1/2	5728.6 (1.0)	S
		3/2	-1782.5 (5)	S
120			900.9 (5)	S
121	3/2	1/2	-1804.1 (40.0)	V
		3/2	- 123.0 (3.0)	S
		5/2	2661.1 (6.0)	S
121m	11/2	9/2	4901.0 (3.0)	S
		11/2	1564.6 (2.0)	S
		13/2	-2340.9 (2.0)	S
122			1136.2 (3)	S
123	11/2	9/2	5070.6 (2.5)	S
		11/2	1797.6 (1.5)	S
		13/2	-2078.5 (8)	S
124			1342.1 (8)	S
125	11/2	9/2	5208.8 (3.0)	S
		11/2	1998.9 (20.0)	V
		13/2	-1817.0 (3.0)	S

Soweit bei Pb in einzelnen Fällen bereits Ergebnisse von Moscatelli /MOS 81/ sowie Timmermann /TIM 80/ vorlagen, sind die von uns erhaltenen Werte durchweg damit konsistent und die Fehler konnten um eine Größenordnung reduziert werden (Fig. 4.5, näheres zum King-Plot-Vergleich siehe Kap. 5.2).

Für Sn lagen ebenfalls Ergebnisse vor. Silver und Stacey haben ihre an stabilem Sn II /SIL 73a/ erhaltenen Ergebnisse durch weit genauere Messungen an stabilem Sn I /BAI 83/ erweitert. Der Vergleich mit unseren Ergebnissen an stabilen Sn-Isotopen zeigt Konsistenz mit den Ergebnissen von SN II (Fig. 4.6). Deutliche Abweichungen zeigen sich jedoch zwischen unseren und den am gleichen Übergang jüngst erhaltenen Werten /BAI 83/ (Fig. 4.7). Man kann die Abweichungen in zwei Gruppen teilen. Einmal liegen die Diskrepanzen bei Isotopen geringer natürlicher Häufigkeit ( $^{112}, ^{114}, ^{115}\text{Sn}$ ). Zum anderen wurde die Gruppe der ungeraden Isotope bei  $F = 1/2$  mit einer Differenz von  $> 6$  MHz unterschiedlich gemessen. Innerhalb dieser Gruppe zeigt sich bei  $^{119}\text{Sn}$  nochmals eine starke Abweichung (ca. 12 MHz). Bei diesen Abweichungen lagen

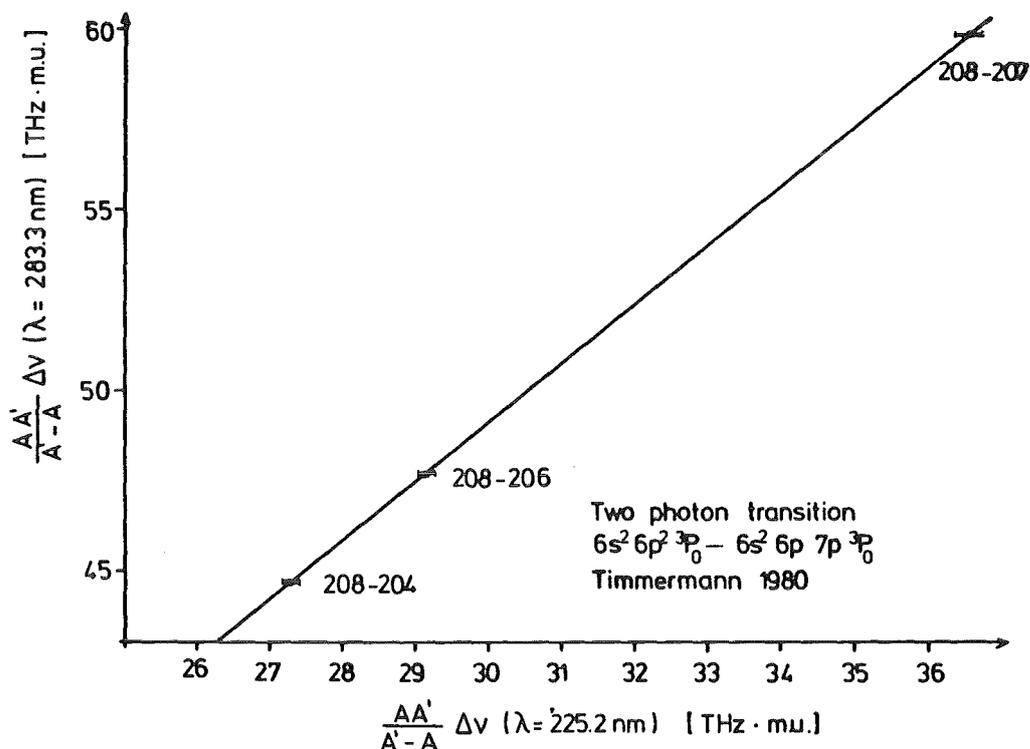


Fig. 4.5: King-Plot-Vergleich unserer Pb-Daten mit Ergebnissen aus dem Übergang bei  $\lambda = 225,2$  nm /TIM 80/

die von der Oxford Group gemessenen Werte durchweg bei höheren Frequenzen. Möglicherweise liegt ein Teil der Diskrepanzen darin begründet, daß in Oxford die Messungen nicht an massengetrennten und damit auch angereicherten Proben durchgeführt wurden, sondern mit einem Präparat, das die Sn-Isotope in ihrer natürlichen Zusammensetzung enthielt. Eine andere Quelle wäre die von Baird et. al schon genannte Instabilität ihrer Referenzfrequenz beim verwendeten Heterodyn-Verfahren. Auffallend ist die Tatsache, daß gerade bei den unterschiedlich gemessenen Isotopen auch die Fehlerangaben jeweils größer gewählt wurden. Systematische Fehler in unseren Messungen könnten sich aus dem Seitenbandwechsel während der Referenzmessung  $^{120}\text{Sn}$  zu  $^{115}\text{Sn}$  ( $F = 1/2$ ) ergeben haben, auf das die Messungen bei den  $F = 1/2$ -Komponenten für  $^{117}\text{Sn}$  und  $^{119}\text{Sn}$  bezogen wurden. Die zusätzliche Diskrepanz mit  $^{119}\text{Sn}$  kann damit aber nicht erklärt werden, da bei diesen Messungen keine Seitenbandwechsel durchgeführt wurden. Dies war auch bei den Messungen mit  $^{112}\text{Sn}$  und  $^{114}\text{Sn}$  nicht der Fall. Erneute Messungen dieser Isotope mit wechselnden Referenz-Isotopen und verschiedenen Seitenbändern könnten diese Diskrepanzen vielleicht beseitigen oder erhärten.

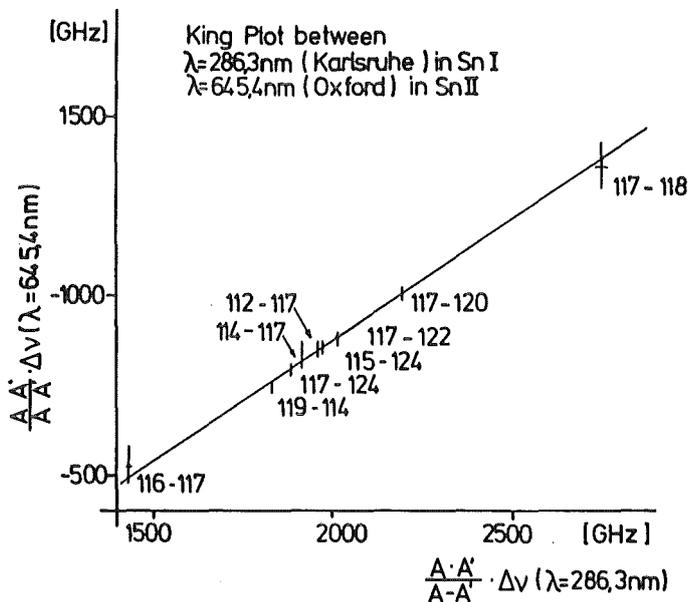


Fig. 4.6: King-Plot-Vergleich unserer Sn-Daten mit Ergebnissen aus dem Übergang bei  $\lambda = 645 \text{ nm}$  in Sn II /SIL 73a/

Jüngste, noch unveröffentlichte Ergebnisse von Lochmann /LOC 84a/ sind konsistent mit unseren Daten (Fig. 4.8). Sie geben keinen Aufschluß über die Diskrepanzen mit Baird et al., da die Fehler hierfür noch zu groß sind.

Fig. 4.4 zeigt die Isomerieverschiebung zwischen  $^{202m}\text{Pb}$  und  $^{202}\text{Pb}$ , beides instabile Isotope. Die Verschiebung, die sich nur aus dem Kernvolumeneffekt ergibt, beträgt nur ca. 38 MHz, was einer Differenz der mittleren quadratischen Ladungsradien von nur  $2/1000 \text{ fm}^2$  entspricht.

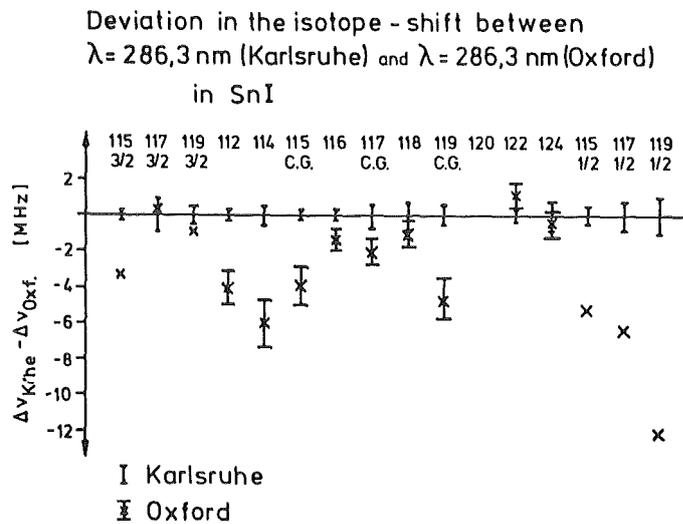


Fig. 4.7: Vergleich unserer Sn-Daten mit Ergebnissen aus dem gleichen Übergang in Sn I /BAI 83/.

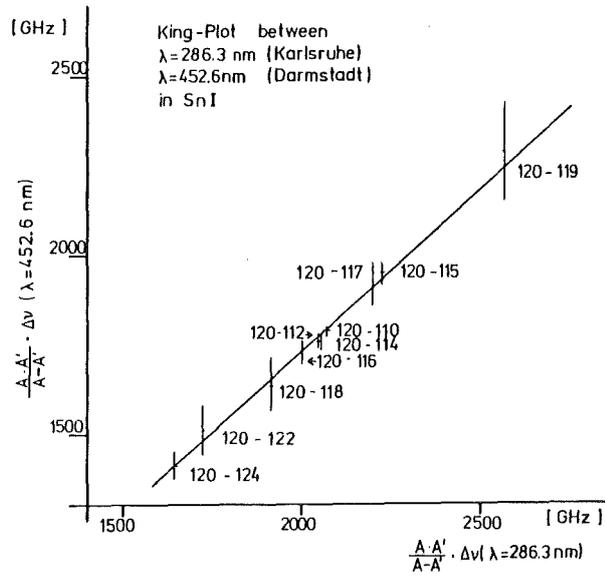


Fig. 4.8: King-Plot-Vergleich unserer Sn-Daten mit Ergebnissen aus dem Übergang bei  $\lambda = 452,6 \text{ nm}$  in Sn I  
/LOC 84a/

## 5. KERNLADUNGSRADIEN UND KERNMOMENTE

### 5.1 Isotopieverschiebung

Die Isotopieverschiebung ist in Fig. 4.1 anhand der stabilen Sn-Isotope deutlich zu sehen. Derselbe atomare Übergang ist insbesondere in der mittleren Gruppe der geraden Isotope gut sichtbar um jeweils ca. 300 MHz verschoben. Diese Verschiebung rührt her von der Abhängigkeit der Energie gebundener atomarer Zustände, von der Masse und der Ausdehnung des betreffenden Atomkerns. Daher ist es möglich, aus der Verschiebung der Spektrallinien der Isotope eines Elements wegen Änderungen der Neutronenzahl auf Differenzen in der Kernladungsausdehnung zu schließen. Die beobachtete Energieverschiebung  $\delta v_i^{AA'}$  eines atomaren Übergangs  $i$  für die verschiedenen Isotope  $A$  und  $A'$  setzt sich also aus einem Massenanteil und einem Volumenanteil, auch Feldeffekt genannt, zusammen:

$$\delta v_i^{AA'} = \delta v_{i, \text{Masse}}^{AA'} + \delta v_{i, \text{Feld (Volumen)}}^{AA'}$$

mit

(5.1)

$$\delta v_i^{AA'} : \equiv v_i^A - v_i^{A'}$$

$i$  : atomarer Übergang

$A, A'$  : Isotopenpaar

$A$  und  $A'$  sind die Massenzahlen der Isotope, auf die sich die Isotopieverschiebung bezieht.

Aus der quantenmechanischen Störungstheorie erster Ordnung läßt sich die Energiedifferenz eines atomaren Zustands für zwei Isotope aus der Differenz der beiden Hamilton-Operatoren für die entsprechenden Zustände gewinnen /SCH 80/.

$$\Delta E = \langle \psi | \Delta H | \psi \rangle \cdot$$

(5.2)

$$= \frac{M' - M}{2\mu\mu'} \langle \psi | \sum_{i,j}^Z \vec{q}_i \vec{q}_j | \psi \rangle + \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0} \langle \psi | \sum_i^Z \Delta f_i | \psi \rangle$$

mit der Abkürzung

$$\Delta f_i = f_M(z_i) - f_{M'}(z'_i)$$

Dabei sind

$\vec{q}_i, \vec{q}_j$  : Operatoren der Elektronenimpulse

$M, M'$  : Kernmassen der beiden Isotope

$\mu, \mu'$  : Gesamtmasse eines Atoms ( $\mu = M + Z \cdot m_e$ )

$f(z)$  : radiale Abhängigkeit der Kernpotentiale in Schwerpunktkoordinaten.

Der erste Summand in Gleichung 5.2 hängt nur von den Massen ab und heißt daher Masseneffekt, während der zweite von der Differenz der beiden Kernpotentiale abhängt, die von der unterschiedlichen Kernladungsverteilung hervorgerufen und Kernvolumeneffekt genannt wird.

Die Existenz eines Masseneffekts in den Spektrallinien ist schon lange bekannt. Im Bohrschen Bild erfahren Termwerte, die zunächst für ein unendlich schweres Massenzentrum gerechnet seien, eine Korrektur um den Faktor  $(1 - \frac{m_e}{M})$ .

$m_e$  : Masse der Elektronen

$M$  : Masse des Kerns

Diese Korrektur, die sich aus der Einführung der reduzierten Masse ergibt, führt zu Frequenzverschiebungen im Linienspektrum; sie ist eine Folge der Mitbewegung des Kerns aufgrund des Elektronenumlaufs um den gemeinsamen Schwerpunkt, der nicht mit dem Kernschwerpunkt zusammenfällt. Diese Korrektur aufgrund des "Bohrschen Mitbewegungseffektes" führte schon 1932 zur spektroskopischen Entdeckung des schweren Wasserstoffs. Der im ersten Summanden der Gleichung 5.2 auftretende Masseneffekt wird üblicherweise in der

folgenden Weise aufgeteilt:

$$\frac{M'-M}{2\mu\mu'} \langle \psi | \sum_{i,j}^Z \vec{q}_i \vec{q}_j | \psi \rangle = \tag{5.3}$$

$$\frac{M'-M}{2\mu\mu'} \{ \langle \psi | \sum_i^Z q_i^2 | \psi \rangle + \langle \psi | \sum_{i=j}^Z \vec{q}_i \vec{q}_j | \psi \rangle \}$$

Hierbei stellt der erste Term den normalen Masseneffekt (NMS) dar, der dem "Bohrschen Mitbewegungseffekt" entspricht, während der zweite, spezifischer Masseneffekt (SMS) genannt, berücksichtigt, inwieweit die Korrelation der Bewegung der Elektronen die Kernbewegung noch zusätzlich beeinflusst. Der normale Masseneffekt ergibt sich aus der Energie des Niveaus bzw. Übergangs  $i$  bei einer Frequenz  $\nu_i$  aus /KOP 56/:

$$\delta \nu_{i \text{ NMS}}^{AA'} = m_e \frac{M^A - M^{A'}}{M^A \cdot M^{A'}} \cdot \nu_i = \frac{m_e}{m_N} \frac{A - A'}{A \cdot A'} \cdot \nu_i \tag{5.4}$$

- $m_e$  : Masse eines Elektrons
- $m_N$  : Masse eines Nukleons

Wie man sieht, klingt der normale Masseneffekt mit steigender Kernmasse mit  $1/M^2$  ab und wird daher bei schweren Kernen bedeutungsloser. Die Terme des schweren Isotops liegen tiefer und besitzen damit größere Übergangsfrequenzen, so daß eine sogenannte "Violettverschiebung" eintritt.

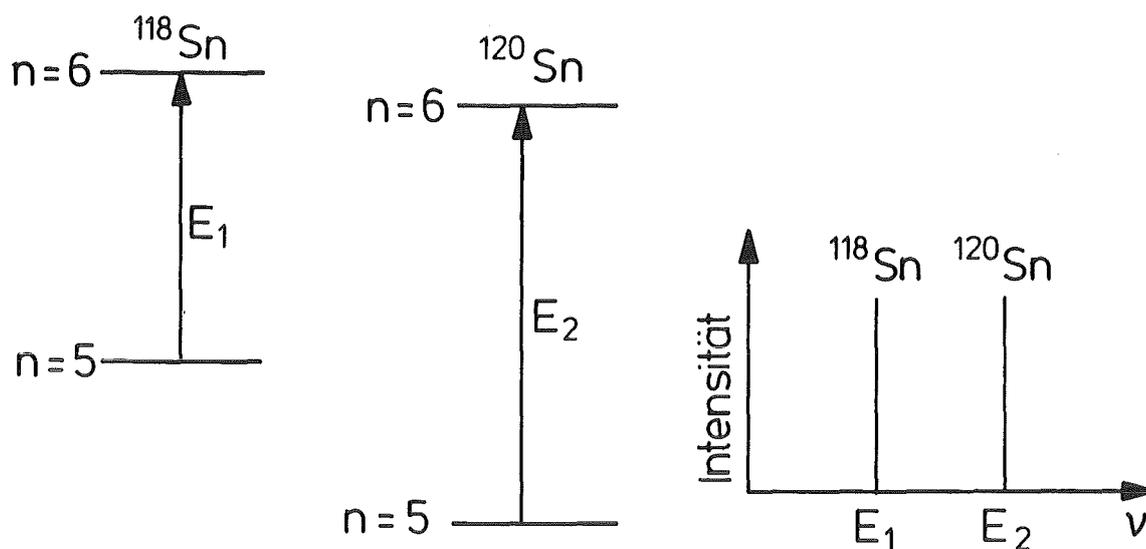


Fig. 5.1: Verschiebung der Termlagen zweier Isotope durch den normalen Masseneffekt. Das rechte Bild zeigt die dadurch verursachte Verschiebung der Übergangsfrequenz ("Violettverschiebung").

Der normale Masseneffekt beträgt für  $\Delta A = 1$  nach Gleichung 5.4 für Pb mit  $\lambda = 283,3 \text{ nm}$  ( $\nu_i = 1,0589 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$ )

$$\delta\nu_{i \text{ NMS}}^{208-207} = 13,4 \text{ MHz}$$

für Sn mit  $\lambda = 286,3 \text{ nm}$  ( $\nu_i = 1,04895 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$ )

$$\delta\nu_{i \text{ NMS}}^{114-113} = 44,3 \text{ MHz}$$

Wesentlich schwieriger gestaltet sich die Bestimmung des spezifischen Masseneffekts (SMS), der in Gleichung 5.3 durch den zweiten Term wiedergegeben wird. Je nach Art der Korrelation der Elektronen wird dadurch der normale Masseneffekt verstärkt oder abgeschwächt. Diese (Zweiteilchen-) Korrelationen sind sehr schwierig zu berechnen. Wie der normale Masseneffekt wird auch der spezifische Masseneffekt mit wachsendem  $M$  mit  $1/M^2$  kleiner. Bei Präzisionsexperimenten ist er aber selbst bei schweren Kernen nicht vernach-

lässigbar, und er kann (im Gegensatz zur NMS) auch negativ sein. Aus der Störungstheorie erhält man für die Energieverschiebung eines Niveaus in erster Näherung /KUH 69/

$$\Delta E = - \frac{\hbar^2}{M} \sum_{i < j} \int \psi^* \nabla_i \cdot \nabla_j \psi \, d^3r \quad (5.5)$$

Die Güte einer Berechnung des spezifischen Masseneffekts hängt demnach wesentlich von der Genauigkeit der Viel-Elektronenfunktion  $\psi$  ab, so daß nur für einfache Konfigurationen eine realistische Näherung möglich ist. Bei der Berechnung des spezifischen Masseneffektes mit Hartree-Fock-Verfahren müssen jedoch Fehler in der Größenordnung des jeweiligen normalen Masseneffektes angenommen werden /FIS 74/.

Zum Kernvolumeneffekt:

Bei schweren Kernen kommt ein dem Masseneffekt in der Regel entgegengesetzter Isotopieverschiebungseffekt hinzu, den Pauli und Peierls 1931 /PAU 31/ als Kernvolumeneffekt deuteten. Bei leichten Kernen überwiegt der Masseneffekt, während bei schweren Kernen meist der Feldeffekt dominiert. Entsprechend teilt man die Elemente in "leichte" ( $Z < 38$ ), "mittelschwere" ( $Z = 38 \dots 57$ ) und "schwere" ( $Z > 58$ ) Elemente ein /HEI 74/. Bei mittelschweren Kernen wie bei dem hier behandelten Sn ( $Z = 50$ ) sind oft beide Effekte vergleichbar groß.

Unter Berücksichtigung endlicher Kernladungsverteilungen hat das elektrische Coulombpotential isotoper Kerne im Kerninnern einen unterschiedlichen Verlauf. Das tieferliegende Kernpotential leichter Isotope kann die sich auch im Kerninnern aufhaltenden s-Elektronen und in geringerem Maße auch die  $p_{1/2}$ -Elektronen der Atomhülle stärker binden als das Kernpotential schwerer Isotope. Nach Lösung der im 2. Term der Gleichung 5.2 auftretenden Matrixelemente der Form

$$\langle \psi | \sum_i f_M(z_i) | \psi \rangle \quad (5.6)$$

unter Berücksichtigung der Green'schen Formel sowie der Näherung, daß die Ladungsdichte der Elektronen im Innern des Kerns konstant

ist, ergibt sich folgender Kernvolumeneffekt eines atomaren Niveaus /SCH 80/

$$\text{KVE} = - \frac{Z \cdot e \rho_e(0)}{6 \epsilon_0} \cdot \frac{M^3}{\mu^3} \cdot \Delta \langle r^2 \rangle \quad (5.7)$$

Hierbei bedeutet  $\langle r^2 \rangle$  den mittleren quadratischen Ladungsradius. Er ist größer für neutronenreiche Isotope, da sich dort die Ladung auf einem vergrößerten Volumen verteilt. Dies bedeutet aber auch geringere Bindung der s-Elektronen der Atomhülle und in geringem Maße auch der  $p_{1/2}$ -Elektronen aufgrund des geringeren Kernpotentials im Kerninnern. So liegt innerhalb eines Feinstrukturterms das leichteste Isotop am tiefsten im Gegensatz zum normalen Masseneffekt.

Für  $ns^2$ - $nsnp$ -Übergänge liegen dann Terme und Übergänge entsprechend Fig. 5.2.

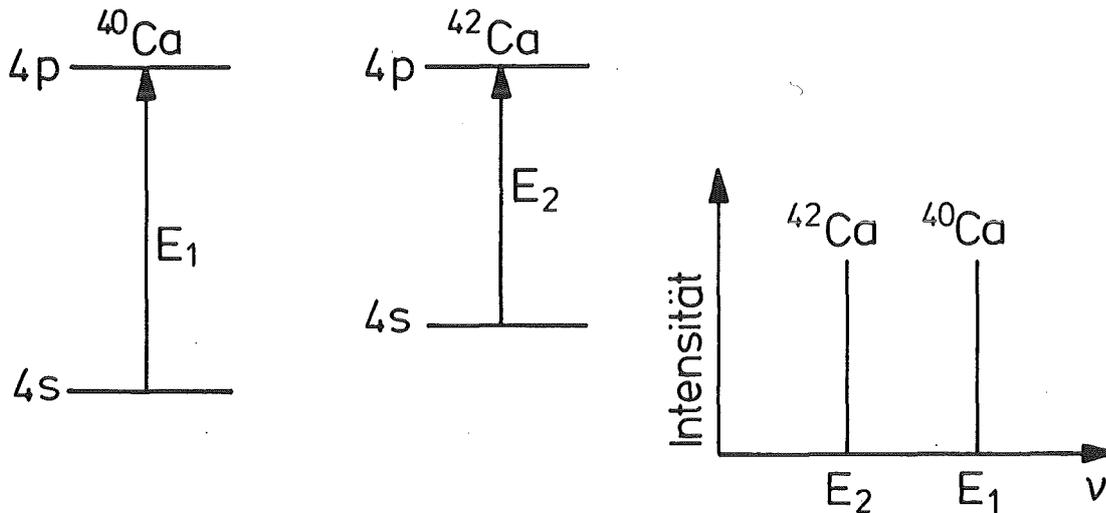


Fig. 5.2: Verschiebung der Termniveaus zweier Isotope durch den Kernvolumeneffekt (KVE) in einem  $ns^2$ - $nsnp$ -Übergang am Beispiel Ca. Das rechte Bild zeigt die dadurch verursachte Verschiebung der Übergangsfrequenz.

Für  $np^2$ - $npns$ -Übergänge (wie bei den hier beschriebenen Pb- und Sn-Experimenten) liegen die Terme energetisch vertauscht; insbesondere tritt hier wieder eine "Violettverschiebung" auf (Fig. 5.3).

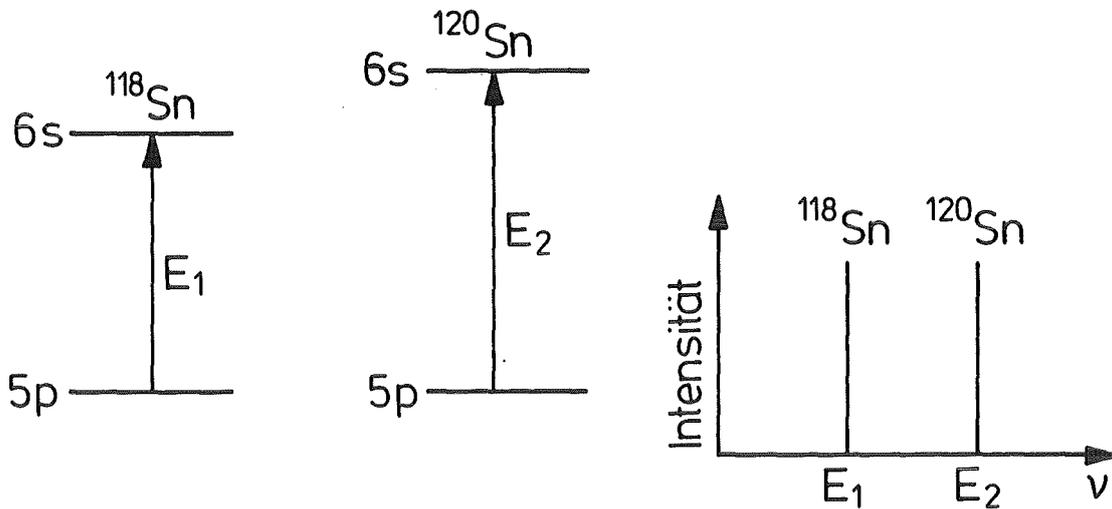


Fig. 5.3: Verschiebung der Termniveaus zweier Isotope durch den Kernvolumeneffekt (KVE) in einem  $np^2$ - $npns$ -Übergang. Das rechte Bild zeigt die dadurch verursachte Verschiebung der Übergangsfrequenz.

Für einen atomaren Übergang gilt dann

$$\text{KVE} = - \frac{Z \cdot e \delta \rho_e(0)}{6 \epsilon_0} \cdot \frac{M^3}{\mu^3} \cdot \delta \langle r^2 \rangle \quad (5.8)$$

Die gemessene Isotopieverschiebung eines optischen Übergangs  $i$  läßt sich also nunmehr darstellen als

$$\delta \nu_i^{\text{AA}'} = F_i \delta \langle r^2 \rangle + \frac{A-A'}{A \cdot A'} \cdot M_i \quad (5.9)$$

Dabei wurden die elektronischen Anteile im Kernvolumeneffekt in einem Faktor  $F_i$  zusammengefaßt, während die beiden Masseneffekte (NMS und SMS) ebenfalls in einem Faktor  $M_i$  zusammengefaßt wurden, wobei zusätzlich die Elektronenmasse gegen die Kernmasse vernachlässigt wurde.

Zur Extraktion der interessierenden Variationen der mittleren quadratischen Ladungsradien  $\delta\langle r^2 \rangle$  entlang einer Isotopenkette aus den gemessenen Frequenzdifferenzen ist demnach die Kenntnis der beiden Faktoren  $F_i$  und  $M_i$  vonnöten.

## 5.2 Bestimmung der mittleren quadratischen Ladungsradien

Es führen einige Wege von den gemessenen Frequenzverschiebungen zur Bestimmung der mittleren quadratischen Ladungsradien. Sie sollen hier zuerst im einzelnen beschrieben werden, um anschließend für Pb und Sn getrennt nachvollzogen zu werden.

Von den beiden Faktoren  $F_i$  und  $M_i$  von Gleichung 5.9 sind nur die elektronischen Größen  $F_i$  und  $SMS_i$  unbekannt, da der normale Masseneffekt berechnet werden kann. Die Parameter  $\delta\langle r^2 \rangle$  und  $A, A'$  sind Kerngrößen, von denen  $A$  und  $A'$  bekannt sind. Nach Messung einer Isotopieverschiebung  $\delta v_i^{AA'}$  für ein Isotopenpaar  $AA'$  und einen Übergang  $i$  ist eine Gleichung mit den Unbekannten  $F_i$ ,  $\delta\langle r^2 \rangle$  und  $SMS_i$  vorhanden.  $F_i$  und  $\delta\langle r^2 \rangle$  können nur als Produkt im linearen Gleichungssystem 5.9 bestimmt werden, so daß die Zahl der Unbekannten zwei ist. Weitere Messungen an anderen Isotopenpaaren liefern jedesmal auch eine zusätzliche Unbekannte  $F_i \cdot \delta\langle r^2 \rangle$ . Messungen an anderen Übergängen  $i'$  für dieselben Isotopenpaare erhöhen die Zahl der Unbekannten je Übergang um 2 (nämlich  $F_i$ , und  $SMS_i$ ). Man kann also prinzipiell die Zahl der Messungen zwar größer machen als die der Unbekannten. Jedoch ist das lineare Gleichungssystem nicht eindeutig auflösbar, da die Gleichungen nicht linear unabhängig voneinander sind.

Um dennoch zu einer Auflösung zu kommen, sind Zusatzinformationen nötig, die einen zentralen Punkt bei der Diskussion von Isotopieverschiebungen bilden:

- Schreibt man die Isotopieverschiebung nach Gleichung 5.9 für zwei verschiedene optische Übergänge  $i = 1, 2$  und eliminiert daraus  $\delta\langle r^2 \rangle$ , so erhält man

$$\frac{A \cdot A'}{A - A'} \cdot \delta v_1^{AA'} = \frac{F_1}{F_2} \frac{A \cdot A'}{A - A'} \delta v_2^{AA'} + \left( M_1 - \frac{F_1}{F_2} \cdot M_2 \right) \quad (5.10)$$

Diese Gleichung stellt wie schon Gleichung 5.9 eine Geradengleichung dar, bei der die elektronischen Faktoren  $F_i$  bzw.  $F_1$  und  $F_2$  die Steigung und der Masseneffekt den Ordinatenabschnitt bestimmen. Trägt man nun in einem Diagramm die "modifizierten Isotopieverschiebungen"  $\frac{A \cdot A'}{A - A'} \cdot \delta v_i^{AA'}$  der beiden Linien in einem sogenannten King-Plot /KIN 63/ gegeneinander auf, so erlaubt eine optimal durchgelegte Gerade, die beiden King-Parameter  $F_1/F_2$  als Steigung und  $M_1 - M_2 \cdot F_1/F_2$  als Achsenabschnitt dieser Geraden zu bestimmen. Durch dieses Vorgehen erhält man aus dem bekannten elektronischen Faktor  $F_1$  und dem Masseneffekt  $M_1$  des Übergangs  $i=1$  die entsprechenden Faktoren für den Übergang  $i=2$ . Dieses Verfahren läßt sich auch in der in den Figuren 4.5 bis 4.8 benutzten Art zur Konsistenzprüfung der Meßergebnisse zwischen zwei verschiedenen Übergängen benutzen. Die Meßwerte sollen, an Gleichung 5.10 ersichtlich, alle auf einer Geraden liegen, die durch die Faktoren  $F_i$  und  $M_i$  bestimmt ist, welche sich entlang der beiden Meßreihen nicht ändern. Abweichungen von der Geraden stellen somit Diskrepanzen zwischen den beiden Experimenten dar.

- Für die Isotopieverschiebungen der Röntgenstrahlung von elektronischen und  $\mu$ -mesonischen Übergängen gelten analoge Beziehungen wie für die Leuchtelektronen-Übergänge eines Atoms. Setzt man also voraus, daß bei der Isotopieverschiebung von  $K_\alpha$ -Röntgenstrahlen und myonischen Röntgenstrahlen das gleiche  $\delta \langle r^2 \rangle$  für die Isotopieverschiebung bestimmt sei, so kann in Gleichung 5.9 das aus solchen Experimenten gewonnene  $\delta \langle r^2 \rangle$  benutzt und in einem entsprechenden King-Plot als Steigung  $F_i$  und als Achsenabschnitt  $M_i$  des optischen Übergangs ermittelt werden. Dieses Verfahren ist jedoch mit Fehlern behaftet: Bei den elektronischen Röntgen-Übergängen sind die Isotopieverschiebungen oft kleiner als die Linienbreiten dieser Übergänge, so daß die Experimente meist viel ungenauere Ergebnisse haben als die optischen. Zudem ist die in die Auswertung dieser Experimente eingehende Berechnung der SMS /HEI 74/ nicht ganz unbestritten /BAU 76/.

Bei  $\mu$ -mesonischen Atomen entfällt der spezifische Masseneffekt ganz, weil es sich bezgl. des  $\mu$ -Mesons um ein wasserstoffähnliches System handelt. Jedoch lassen sich die  $\mu$ -mesonischen Daten erst nach Korrekturen für die Kernpolarisation und für eventuell vorhandene dynamische Quadrupoleffekte verwenden /BAU 76/. Zudem muß beachtet werden, daß durch das tiefere Eintauchen des Myons in den Kern dieses empfindlicher auf die Form der Ladungsverteilung im Innern ist. Deshalb werden mit der myonischen Isotopieverschiebung keine  $\delta\langle r^2 \rangle$  bestimmt, sondern sogenannte Barrett-Momente  $\delta\langle r^k e^{-\alpha r} \rangle$  /BAR 77, ENG 74/. Dabei ist  $k$  eine vom Übergang des Myons abhängige Zahl zwischen 1,4 und 4. Dies bedeutet, daß ein sinnvoller Vergleich optischer und myonischer Daten nur über eine Modellannahme für die Ladungsverteilung des Kerns möglich ist.

- Man kann z.B. berechnete  $SMS_i$ -Werte benutzen, die aber im Falle des Pb und Sn derzeit nicht zur Verfügung stehen.
- Ebenfalls berechnen kann man den elektronischen Faktor  $F_i$ . In ihn geht, wie aus Gleichung 5.8 ersichtlich, die Elektronendichte bzw. Änderung  $\delta\rho_e(0)$  am Kernort ein. Diese Änderung läßt sich über  $\delta\rho_e(0) = e\delta|\psi(0)|_{ns-np}^2$  aus der Wellenfunktion am Kernort berechnen, jedoch ist eine realistische Berechnung von  $|\psi(0)|^2$  aber nur für alkaliähnliche s-Elektronen möglich. Der Index  $ns-np$  gibt den dabei betrachteten Übergang an.
- Es bleibt noch die "experimentelle" Bestimmung von  $|\psi(0)|^2$  aus der magnetischen Hyperfeinstruktur-Aufspaltung oder über die Goudsmit-Fermi-Segré-Formel /KUH 69/ aus der Feinstruktur. Dieser Weg einer Kombination aus Berechnung und z.T. experimentellen Bestimmung von  $F_i$  soll im Falle des Sn ausführlich dargestellt werden.

2.1 Bestimmung von  $\delta\langle r^2 \rangle$  für Pb

Für schwere Elemente wie Pb müssen in Gleichung 5.9 noch höhere Momente des Ladungsradius berücksichtigt werden, so daß die Gleichung lautet

$$\delta v_i^{AA'} = F_i \lambda + \frac{A-A'}{A \cdot A'} \cdot M_i \quad (5.11)$$

mit /SEL 69/

$$\lambda \equiv \delta\langle r^2 \rangle + \frac{C_2}{C_1} \delta\langle r^4 \rangle + \frac{C_3}{C_1} \delta\langle r^6 \rangle$$

Unter Benutzung theoretischer Standard-Modelle für die undefor- mierte Kernladungsverteilung kann man Werte für die Verhältnisse von  $\delta\langle r \rangle / \delta\langle r^2 \rangle$  und  $\delta\langle r^3 \rangle / \delta\langle r^2 \rangle$  erhalten und diese mit den bei Seltzer tabellierten Koeffizienten kombinieren, so daß man erhält /THO 83/ :

$$\lambda = \delta\langle r^2 \rangle (1 - 0,084 + 0,014) = 0,93 \delta\langle r^2 \rangle,$$

was auf etwa 2 % genau geschätzt wird. Zur Festlegung von  $F_i$  und  $M_i$  lagen drei verschiedene Ausgangs-Datensätze vor:

1. Die aus den myonischen Röntgendaten von Kessler und Mitar- beitern /KES 75/ gewonnenen mittleren quadratischen Ladungsradi- en ergeben im King-Plot-Vergleich mit unseren optischen Verschiebungen einen hohen Wert für  $M_i$ , und zwar  $-700(1300)$  mal den NMS. Dieser Wert ist höchst unwahrscheinlich, da die SMS, die den Viel-Teilchen-Beitrag zum totalen Masseneffekt darstellt, gewöhnlich von gleicher Größenordnung wie der normale Masseneffekt oder kleiner ist. Speziell er- gäbe sich für das Isotopenpaar  $^{207,208}\text{Pb}$ , bei dem der normale Masseneffekt  $-13,4$  MHz beträgt, daß die gemessene Isotopiever- schiebung von  $-1390$  MHz bei einer Verwendung der Kessler- Daten vollständig aus dem Masseneffekt ( $M_i$ ) bestünde.

Ein weiterer Befund, der die Kessler-Daten fragwürdig erscheinen läßt, ist das fehlende "odd-even-staggering" zwischen den Isotopen 206, 207 und 208, das sich in unseren Daten deutlich zeigt, was die Notwendigkeit eines wesentlich größeren Anteils des Kernvolumeneffekts nahelegt, da dieses "odd-even-staggering" wegen der Konstanz der Faktoren  $F_i$  und  $M_i$  entlang einer Isotopenkette nur von der unterschiedlichen Verteilung der Ladung herrühren kann.

2. Die von Borchert und Mitarbeitern /BOR 83/ erhaltenen Daten aus elektronischen Röntgenübergängen zeigen ausgeprägtes "odd-even-staggering" und der sich aus dem King-Plot ergebende Wert für  $M_i$  ist  $22,7 (3,4) \cdot \text{NMS}$ . Aber auch dieser Wert scheint unbegründet, da King-Plots unserer Daten mit solchen anderer optischer Experimente /BRI 52, LIN 81, HÜF 82, TIM 80 (Fig. 4.5)/ für  $M_i$  eine Größenordnung von höchstens  $\pm 5 \cdot \text{NMS}$  plausibel machen.
3. Eine kombinierte Analyse der Ergebnisse für elektronische und myonische Röntgenübergänge von Fricke und Rychel /FRI 81/ ergeben einen totalen Masseneffekt  $M_i$  von  $-7,1(13,1) \cdot \text{NMS}$  (Fig. 5.4). Hier wird dieser Wert benutzt, da dies konsistent mit den anderen optischen Daten ist. Für  $F_i$  erhält man aus denselben Daten  $22,1(3,3) \text{ GHz/fm}^2$ .

Tabelle 5.1 gibt die mit den so gewonnenen Werten für  $F_i$  und  $M_i$  erhaltenen Werte für die Differenzen der mittleren quadratischen Ladungsradien wieder. Die statistischen Fehler unserer Messungen (Tab. 4.1) wurden vernachlässigt, da sie alle weniger als  $\pm 0,003 \text{ fm}^2$  ausmachen, d.h. die Fehler in  $\delta\langle r^2 \rangle$  sind ausschließlich durch die Unsicherheit von  $F_i$  und  $M_i$  bestimmt.

Die graphische Darstellung der Variationen der mittleren quadratischen Ladungsradien in Pb zeigt Fig. 5.5.

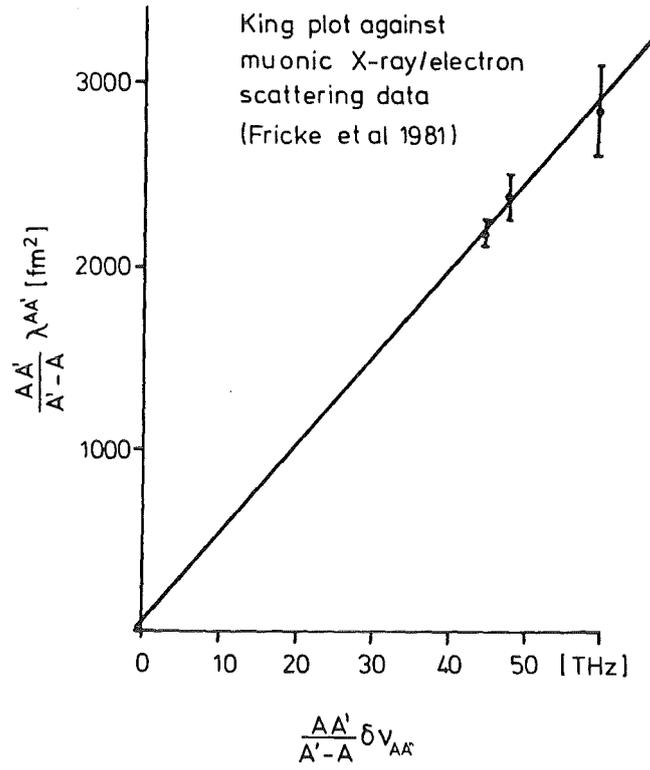


Fig. 5.4: King-Plot unserer Pb-Daten gegen Daten von Fricke u.a. /FRI 81/ zur Festlegung der Faktoren  $F_i$  und  $M_i$ . Es ergibt sich für  $F_i = 22,1 (3,3) \text{ GHz/fm}^2$  und für  $M_i = -95 (175) \text{ MHz}$

Tabelle 5.1: Variation der mittleren quadratischen Ladungsradien der Pb-Kerne.

Isotop Pb	Isotopie- verschiebung [MHz]	$\lambda$ [fm <sup>2</sup> ]	$\delta \langle r^2 \rangle$ [fm <sup>2</sup> ]	Staggering- Parameter $\gamma$
196	-11441 (30)	-0.5722 (157)	-0.6152 (168)	
197	-11402 (19)	-0.5657 (88)	-0.6082 (94)	.16
197m	-10827 (17)	-0.5396 (119)	-0.5802 (127)	
198	-9848 (5)	-0.4906 (105)	-0.5275 (113)	
199	-9748 (9)	-0.4814 (51)	-0.5176 (55)	.21
200	-8094.1 (3.5)	-0.4018 (66)	-0.4321 (71)	
201	-7727.6 (5.0)	-0.3806 (38)	-0.4093 (40)	.45
202	-6193.7 (3.5)	-0.3067 (41)	-0.3298 (44)	
202m	-6230.4 (5.0)	-0.3084 (39)	-0.3316 (42)	
203	-5749.0 (5.0)	-0.2821 (34)	-0.3033 (36)	.50
204	-4212.0 (2.5)	-0.2081 (23)	-0.2237 (24)	
205	-3712.6 (3.0)	-0.1810 (36)	-0.1947 (39)	.55
206	-2226.6 (2.5)	-0.1094 (12)	-0.1176 (12)	
207	-1390.0 (2.5)	-0.0672 (22)	-0.0723 (24)	.77
208	0.0	0.0	0.0	
209	1767.0 (9.0)	0.0842 (49)	0.0906 (52)	.89
210	3973.7 (3.5)	0.1883 (128)	0.2025 (138)	
212	7815 (30)	0.3705 (249)	0.3984 (268)	
214	11503 (20)	0.5450 (360)	0.5860 (380)	

5.2.2 Bestimmung von  $\bar{\sigma}\langle r^2 \rangle$  für Sn

Für Sn lagen einige Datensätze aus myonischen und elektronischen Röntgenübergängen vor. Die damit nach dem King-Plot-Verfahren unter Benutzung der von uns gewonnenen Isotopieverschiebungen erhaltenen Werte für die elektronischen Faktoren  $F_i$  und  $M_i$  (Tab.5.2) zeigen deutlich ihre große Diskrepanz untereinander als auch die Größe der Absolutfehler.

Tabelle 5.2 Ergebnisse für die aus King-Plots erhaltenen Werte für  $F_i$  und  $M_i$  /FIC 72, BHA 69, BOE 74/. Die Werte von /EHR 68/ und /MAC 70/ sind der Tabelle von /ENG 74/ entnommen, in der sie ohne Fehlerangaben aufgeführt sind. Die Fehler werden von uns auf  $\pm 0,001 \text{ fm}^2$  abgeschätzt. Die Diskrepanzen in den Werten für  $F_i$  und  $M_i$  ergeben sich aus den Diskrepanzen in den Meßwerten zwischen den myonischen und elektronischen Röntgenübergängen.

Referenz	F [GHz/fm <sup>2</sup> ]	M [MHz]	M <sub>SMS</sub> [MHz]
/FIC 72/	3.3 (0.15)	-163.8(19.4)	-247(19)
/BHA 69, BOE 74/	1.04(0.09)	147 (13)	63(13)
/EHR 68/	2.15(0.10)	- 18.8(13.0)	-102(13)
/MAC 70/	2.44(0.11)	- 46.3(14.0)	-130(14)

Wir haben uns daher an eine von Stacey und Mitarbeitern für Sn durchgeführte Bestimmung von  $F_i$  und  $M_i$  /BAI 83/ angeschlossen, da dieses Verfahren Werte liefert, die von den Autoren auf 10 % genau angegeben sind.

Bestimmung von  $F_i$ :

$F_i$  kann bestimmt werden aus einem Vergleich mit einem anderen optischen Übergang, dessen  $F_i$  bekannt ist. Aus der Hyperfeinaufspaltung in Sn II bei  $\lambda = 645$  nm für den Übergang  $5s^2 6s^2 S_{1/2} - 5s^2 6p^2 P_{3/2}$  ( $i=1$ ) kann das hierzu gehörige  $F_1$  berechnet werden, wenn sowohl die magnetische Hyperfeinstruktur als auch die Isotopieverschiebung hauptsächlich durch die Wellenfunktion des s-Elektrons  $|\psi(0)|_{ns-np}^2$  bestimmt ist. Es ist nützlich,  $F_i$  in zwei Faktoren aufzuteilen:

$$F_i = E_i \cdot f(z) \quad (5.12)$$

wobei  $E_i$  einen elektronischen Faktor darstellt, der von der Änderung der totalen nicht-relativistischen Elektronenladungsdichte im Kernort für den Übergang  $i$  abhängt:

$$E_i \equiv \frac{\pi a_0^3}{Z} \Delta |\psi(0)|_i^2 \quad (5.13)$$

$f(z)$  ist eine Funktion, welche mit  $Z$  anwächst und vor allem die relativistischen Korrekturen zu  $E_i$  einschließt sowie der begrenzten Kernladungsverteilung Rechnung trägt.  $f(z)$  kann aus Rechnungen von Babushkin /BAB 63/ entnommen werden, der eine theoretische Isotopieverschiebungskonstante  $C_{unif}^{AA'}$  berechnet für einen homogen geladenen Kern vom Radius  $R = r_0 \cdot A^{1/3}$ . Die Funktionen  $f(z)$  und  $C_{unif}^{AA'}$  hängen wie folgt miteinander zusammen:

$$f(z) = \frac{5}{2} \bar{A}^{1/3} \cdot \frac{C_{unif}^{AA'}}{r_0^2 (A' - A)} \cdot \left( \frac{R_{eq}}{r_0 \bar{A}^{1/3}} \right)^{2\sigma - 2} \quad (5.14)$$

/HEI 74/ mit

$$\begin{aligned} \bar{A} &= (A + A') / 2 \\ r_0 &= 1,2 \text{ fm} \\ R_{eq}^2 &= \frac{5}{3} \langle r^2 \rangle \\ \sigma &= (1 - \alpha^2 \cdot Z^2)^{1/2} \end{aligned}$$

(siehe Gleichung (4) und (5) bei /BAB 63/, dabei wurde  $(R_{eq}/r_0 \bar{A}^{1/3})^{2\sigma - 2} \approx 1$  benutzt.

Es folgt  $f(z) = -8,67 \text{ GHz/fm}^2$ .

Für ein alkaliähnliches ns-Elektron kann die Ladungsdichte der Elektronen am Kernort  $|\psi(0)|_{ns}^2$  aus anderen gut meßbaren Daten der Atome bestimmt werden. Dies kann einmal über die Feinstrukturaufspaltung eines Atoms oder Ions mit Hilfe der Goudsmit-Fermi-Segré-Formel geschehen oder über die magnetische Hyperfeinaufspaltung durch die Kontaktwechselwirkung für ein s-Elektron /KOP 58, KUH 69, SCH 80/. Bei den Verfahren wird eine Ungenauigkeit von nur wenigen Prozent angenommen, wobei reine Elektronenkonfigurationen notwendig sind. Bei dem von Silver und Stacey /SIL 73a/ benutzten Übergang in Sn II bei  $\lambda = 645 \text{ nm}$  trägt nur das s-Elektron zur Änderung der Ladungsdichte der Elektronen bei, so daß für diesen Übergang ( $i = 1$ ) geschrieben werden kann

$$E_1 = \frac{\pi a_0^3}{Z} \Delta |\psi(0)|_{6s-6p}^2 = \frac{\pi a_0^3}{Z} |\psi(0)|_{6s}^2 \quad (5.15)$$

Sie fanden für  $E_1 = 0,209 (2)$  /SIL 73b/. Jedoch müssen noch geringe Beiträge durch die sogenannte Abschirmung aus den inneren Schalen berücksichtigt werden. Unter Vernachlässigung kleinster Beiträge von  $np_{1/2}$ -Elektronen, für die die Ladungsdichte aus einem Bruchteil von  $|\psi(0)|_{ns}^2$  berechnet werden kann /FRA 62/, kann man für die totale Änderung von  $|\psi(0)|^2$  in einem (core + ns) - (core' + np)-Übergang schreiben

$$\Delta |\psi(0)|_{ns-np}^2 = \beta |\psi(0)|_{ns}^2 \quad (5.16)$$

mit

$$\beta = \frac{|\psi(0)|_{core}^2 + |\psi(0)|_{ns}^2 - |\psi(0)|_{core'}^2}{|\psi(0)|_{ns}^2}$$

Der Abschirm-Faktor  $\beta$  berücksichtigt die Änderung in der Abschirmung der Valenzelektronen durch die inneren Rumpfelektronen bei dem Übergang ns-np.  $\beta$  kann aus Hartree-Fock-Rechnungen erhalten werden /WIL 72, COU 73/.  $\beta = 1,17$  wurde für den Übergang in Sn II /SIL 73b/ mit einem Fehler von knapp 10 % gefunden.

$F_1$  hat mit  $f(z) = -8,67 \text{ GHz/fm}^2$ ,  $\beta = 1,17$  und  $E_1 = 0,209$  (2) einen Wert von  $F_1 = -2,13 \text{ GHz/fm}^2$  mit einer Unsicherheit von ungefähr 10 %, die hauptsächlich dem Fehler in  $\beta$  zuzuschreiben ist. Dabei wurde die hier sicherlich zutreffende Annahme gemacht, daß der  $5s^26s$ -Zustand in Sn II nicht allzu stark gestört ist. Wenn man in einem King-Plot die Werte aus dem Übergang in Sn II /SIL 73a/ gegen unsere Werte aus dem Übergang in Sn I aufträgt, erhält man aus der Steigung das Verhältnis von  $F_1/F_2$  (siehe Gleichung 5.10) (Fig. 4.6). Man findet  $F_1/F_2 = -0,65$  (3), woraus mit  $F_1 = -2,13 \text{ GHz/fm}^2$  für  $F_2 = 3,3$  (5)  $\text{GHz/fm}^2$  folgt. Der Achsenabschnitt beträgt 63 (9) GHz. Zur Bestimmung von  $M_2$  kann dies aber nicht benutzt werden, da der Masseneffektfaktor  $M_1$  in Sn II unbekannt ist.

Bestimmung von  $M_i$ :

Zur Bestimmung von  $M_i$  wurde das Ergebnis für die Isotopieverschiebung von  $^{124}\text{Sn} - ^{116}\text{Sn}$  im  $K_\alpha$ -Übergang, gemessen von Bhattacharjee /BHA 69/ benutzt. In dieser Arbeit wird das dabei erhaltene  $\delta\langle r^2 \rangle^{124-116}$  auf 4 % genau angegeben. Aus Gleichung 5.9 folgt

$$M_i = \frac{A \cdot A'}{A - A'} \left( \delta\nu_i^{124-116} - F_i \delta\langle r^2 \rangle^{124-116} \right) \quad (5.17)$$

Mit  $\delta\nu_2^{124-116} = 1016,9$  (1,0) MHz,  $\delta\langle r^2 \rangle^{124-116} = 0,428$  (14)  $\text{fm}^2$  /BHA 69/ und  $F_2 = 3,3$  (5)  $\text{GHz/fm}^2$  erhält man  $M_2 = -98$  (70) MHz. Der große Fehler in  $M_2$  resultiert hauptsächlich aus der Unsicherheit in  $F_2$ . Tabelle 5.3 gibt die dann erhaltenen Werte für  $\delta\langle r^2 \rangle$  aus den von uns gemessenen Isotopieverschiebungen an. Die Fehler haben drei Ursachen:

- die Unsicherheit im Wert für  $F_1$
- die Unsicherheit im Ergebnis von  $\delta\langle r^2 \rangle^{124-116}$  aus dem  $K_\alpha$ -Röntgenübergang
- die Unsicherheit in den optischen Messungen, was sowohl direkt eingeht, aber vor allem in die Steigung der King-Plot-Geraden  $F_1/F_2$ .

Tabelle 5.3: Variation der mittleren quadratischen Ladungsradien der Sn-Nuklide, berechnet mit  $F_i = 3,3$  (5) GHz und  $M_i = -98$  (70) MHz

Isotop Sn	Isotopie- verschiebung [MHz]	$\delta \langle r^2 \rangle$ [fm <sup>2</sup> ]	Staggering Parameter $\gamma$
110	- 668.3(7.0)	-0.271(56)	
112	- 317.4(0.3)	-0.129(27)	
113	- 178.9(1.3)	-0.071(14)	0.91
114	0.0	0.0	
115	95.3(0.3)	0.045(11)	0.69
116	325.2(0.3)	0.131(27)	
117	431.1(0.7)	0.179(38)	0.77
117m	420.1(2.2)	0.176(37)	
118	630.6(0.8)	0.255(52)	
119	721.2(0.5)	0.298(62)	0.76
120	900.9(0.3)	0.368(76)	
121	988.8(7.8)	0.409(86)	0.82
121m	972.7(1.3)	0.404(85)	
122	1136.2(0.3)	0.468(98)	
123	1199.5(0.9)	0.502(107)	0.74
124	1342.1(0.8)	0.559(118)	
125	1406.5(6.8)	0.593(127)	

Die graphische Darstellung der Variation der mittleren quadratischen Ladungsradien in Sn zeigt Fig. 5.6.

### 5.3 Hyperfeinstruktur und Kermmomente

Außer der Ladung (dem elektrischen Monopol) besitzt der Kern noch elektromagnetische Multipolmomente höherer Ordnung. Die Wechselwirkung dieser Multipolmomente mit dem elektromagnetischen Feld der Elektronen ist verantwortlich für die Aufspaltung der Feinstrukturterme in jeweils mehrere Hyperfeinstrukturturniveaus.

Aufgrund von Symmetrieargumenten über Parität und Zeitumkehr /MAY 84/ können nur folgende Multipolmomente ( $2^k$ -Polmomente) von Null verschieden sein: Magnetische Momente für ungerades  $k$  und elektrische Momente für gerades  $k$ , d.h. die elektrische Ladung ( $k = 0$ ), der magnetische Dipol ( $k = 1$ ), der elektrische Quadrupol ( $k = 2$ ) usw. Die Wechselwirkung der Multipolmomente höherer Ordnung ( $k \geq 3$ ) mit den Elektronen ist meistens vernachlässigbar klein. Sie konnten bei der im Rahmen dieser Arbeit vorliegenden Meßgenauigkeit nicht nachgewiesen werden.

Die magnetische Dipol-Wechselwirkung zwischen Elektronen und Kern setzt sich aus zwei Teilen zusammen: aus einer Einstellungsenergie des Kernmagneten in dem Magnetfeld, das am Kernort durch den Elektronenumlauf erzeugt wird und aus der Kopplungsenergie zwischen den magnetischen Eigenmomenten von Kern und Elektronen.

Die energetische Verschiebung eines Hyperfeinstrukturterms mit der Quantenzahl  $F$  ergibt sich in 1. Ordnung der quantenmechanischen Störungstheorie /KOP 56/:

$$\Delta W_F = \frac{\mu_I \cdot \overline{H(0)}}{2I \cdot J} [F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)] \quad (5.18)$$

Die Größe  $\frac{\mu_I \cdot \overline{H(0)}}{I \cdot J}$  wird A-Faktor genannt.

Die Wechselwirkung zwischen dem elektrischen Kernquadrupolmoment  $Q_s$  und dem elektrischen Feldgradienten am Kernort  $V_{zz}(0)$  verschiebt die Energie des Hyperfeinstrukturterms ebenfalls in 1. Ordnung wie folgt:

$$\Delta W_Q = \frac{e Q_S \cdot V_{ZZ}(0)}{4} \frac{3/4C(C+1) - I(I+1) \cdot J(J+1)}{2I(2I-1) \cdot J(2J-1)}$$

mit

(5.19)

$$C = F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)$$

Die Größe  $e Q_S V_{ZZ}(0)$  wird B-Faktor genannt.

Aus den spektroskopischen Messungen von Hyperfeinaufspaltungen können unmittelbar die beiden Faktoren A und B entnommen werden. Sie sind für Pb und Sn in den Tabellen 5.4 und 5.5 zusammengestellt:

Tabelle 5.4: A- und B-Faktoren der Hyperfeinaufspaltung des Übergangs  $6p^2 \cdot {}^3P_0 - 6p7s \cdot {}^3P_1$  in Pb I bei einer Wellenlänge von 283.3 nm. Ebenfalls angegeben sind die entsprechenden Kernmomente. Die Bestimmung der elektronischen Felder ist im Text angegeben.

Isotop Pb	A-Faktor [MHz]	B-Faktor [MHz]	Magn. Moment [n.m.]	Quadrupol- Moment [e.b.]
197	-5327 (11)	9 (20)	-1.0753 (22)	-0.05 (11)
197m	-1263 (3)	-54 (39)	-1.1045 (27)	0.29 (21)
199	-5322 (6)	-9 (10)	-1.0742 (12)	0.05 (5)
201	2007.5 (1.3)	1 (5)	0.6753 (5)	-0.01 (7)
202m	-187.9 (0.5)	-67 (9)	-0.2276 (7)	0.36 (18)
203	2040.3 (1.3)	-11 (6)	0.6864 (5)	0.06 (5)
205	2115.7 (0.8)	-26 (4)	0.7117 (4)	0.14 (7)
207	8807.2 (3.0)	-	0.59258(1)	-
209	-2433 (3)	31 (19)	-1.4735 (16)	-0.16 (10)

Tabelle 5.5: A- und B-Faktoren der Hyperfeinaufspaltung des Übergangs  $5p^2 \ ^3P_0 - 5p6s \ ^3P_1$  in Sn I bei einer Wellenlänge von 286,3 nm. Ebenfalls angegeben sind die entsprechenden Kernmomente. Die Bestimmung der elektronischen Felder ist im Text angegeben.

Isotop Sn	A-Faktor [MHz]	B-Faktor [MHz]	Magn. Moment [n.m.]	Quadrupol- Moment [e.b.]
113	-4203.2(1.4)		-0.8789 (3)	
115	-4394.1(0.4)		-0.91883	
117	-4786.4(0.8)		-1.0009 (2)	
117m	- 607.1(0.3)	50.2(6.4)	-1.3965 (6)	-0.395(64)
119	-5007.4(0.7)		-1.0471 (2)	
121	1115.5(6.9)	- 4 (13)	0.6998(43)	0.03 (11)
121m	- 603.2(0.3)	17.6(2.8)	-1.3876 (7)	-0.139(26)
123	- 595.8(0.2)	- 3.8(2.1)	-1.3705 (5)	0.029(17)
125	- 585.6(0.4)	10 (20)	-1.3470(11)	0.08 (16)

Relativistische Korrekturen von  $\Delta W_F$  oder Korrekturen aufgrund der räumlichen Verteilung von  $\mu_I$  (Hyperfeinstruktur-Anomalie) sind für Pb und Sn vernachlässigt worden, weil sie kleiner als die Meßfehler für die A-Faktoren sind. Um aus den beiden Faktoren A und B das magnetische Dipolmoment  $\mu_I$  und das spektroskopische Quadrupolmoment  $Q_S$  zu erhalten, ist die genaue Kenntnis des Magnetfeldes am Kernort  $\overline{H(0)}$  bzw. des elektrischen Feldgradienten am Kernort  $V_{zz}(0)$  erforderlich. Die Verwendung experimenteller Ergebnisse liefert bei Nicht-Alkali-Atomen genauere Werte für  $\overline{H(0)}$  und  $V_{zz}(0)$  als die schwierige und mit großen Unsicherheiten behaftete Berechnung für Mehrelektronensysteme. Mit einem bekannten Wert für  $\mu_I$  bzw.  $Q_S$  eines Isotops kann aus dem experimentell bestimmten A- bzw. B-Faktor  $\overline{H(0)}$  und  $V_{zz}(0)$  für diesen Übergang bestimmt werden. Im Falle des Pb wurde für das magnetische Dipolmoment der Wert 0,59258(1) n.m.

von  $^{207}\text{Pb}$  /LED 78/ zur Bestimmung von  $\overline{H(0)}$  verwendet, das mit Hilfe einer NMR-Messung gewonnen wurde.

Es gibt keine unabhängigen Messungen von Kernquadrupolmomenten in Blei, die wir zur Bestimmung von  $V_{zz}(0)$  hätten verwenden können, so daß wir auf Rechnungen von Moscatelli /MOS 80/ mit  $V_{zz}(0) = -186(84) [\text{C cm}^2 \text{ s}]^{-1}$  zurückgreifen mußten; dies brachte einen Fehler von  $\pm 45\%$  in den Quadrupolmomenten mit sich. Für  $^{199}\text{Pb}$  ergab sich aus unseren Messungen ein mit dem in der Literatur angegebenen Kernspin  $I = 5/2$  /LED 78/ nicht verträglicher Kernspin von  $I = 3/2$  (siehe Anhang). Das magnetische Moment dieses Kerns wurde unter Benutzung von  $I = 3/2$  errechnet.

Bei Sn benutzten wir zur Bestimmung von  $\overline{H(0)}$  den Wert  $-0.91883$  für  $^{115}\text{Sn}$  /LED 78/. Für  $V_{zz}(0)$  benutzten wir Rechnungen von Dembczynski /DEM 84/ mit  $V_{zz}(0) = -127(13) (\text{C cm}^2 \text{ s})^{-1}$ .

Die magnetischen Momente sind bei Pb und Sn in guter Übereinstimmung mit den Schmidt-Linien. Diese Übereinstimmung wie auch Studien der B-Faktoren zeigen deutlich, daß im Rahmen der Fehler wie erwartet kaum Deformationen vorhanden sind; eine Ausnahme bilden wie ebenfalls erwartet die Isomere. Die nahezu mit Null verträglichen B-Faktoren legen insbesondere nahe, daß es keinen nennenswerten Deformationsanteil im Kernvolumeneffekt der Isotopieverschiebung gibt. Der detaillierte Verlauf der mittleren quadratischen Kernladungsradien spiegelt deshalb ganz überwiegend Schalenstruktureffekte bei vernachlässigbarer Deformation wider.

5.4 Diskussion

In den Figuren 5.5 und 5.6 sind die in den Tabellen 5.1 und 5.3 aufgeführten Werte für die Differenzen in den mittleren quadratischen Ladungsradien graphisch über den Nukleonenzahlen für Pb und Sn aufgetragen. In beiden Fällen rühren die Größen der Fehlerbalken fast vollständig von den Eichungen der elektronischen Faktoren

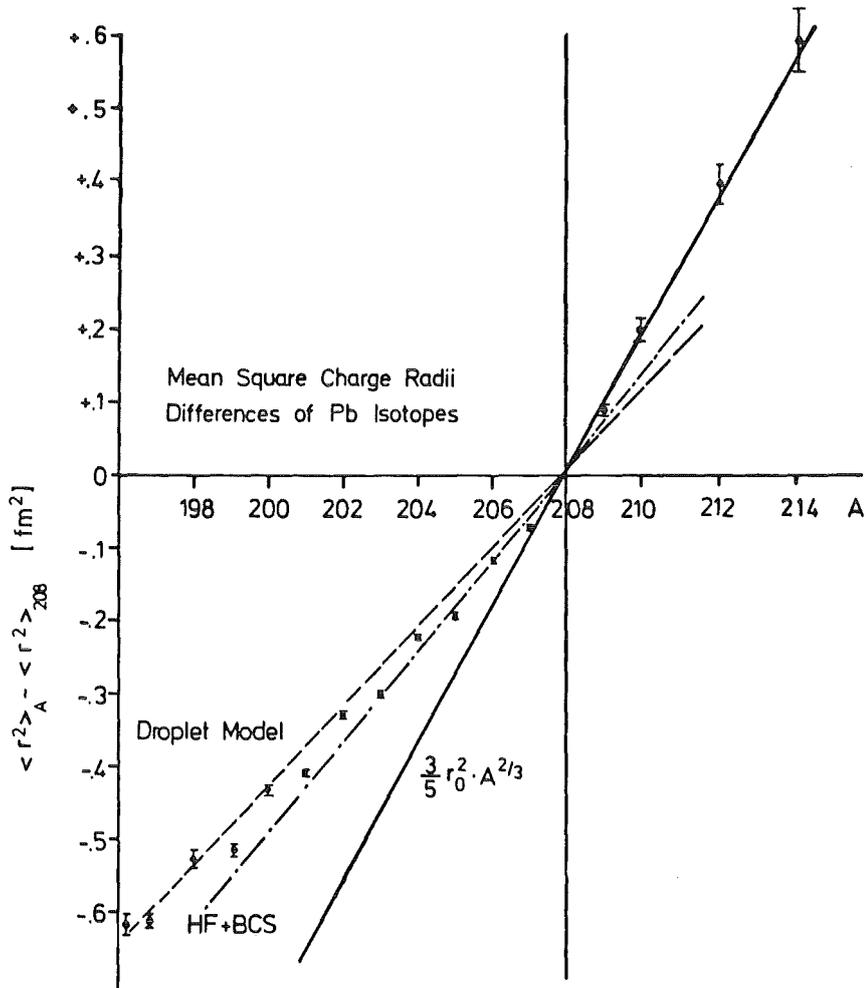


Fig. 5.5: Verlauf der mittleren quadratischen Ladungsradien in Pb. Die Fehlerbalken rühren nur von der Unsicherheit in der Bestimmung der Faktoren  $F_i$  und  $M_i$  her. Als Geraden sind Ergebnisse aus dem Tröpfchenmodell mit  $r_0 = 1,2$  fm und aus dem Droplet-Modell sowie Hartree-Fock- und BCS-Rechnungen /THO 83/ eingezeichnet.

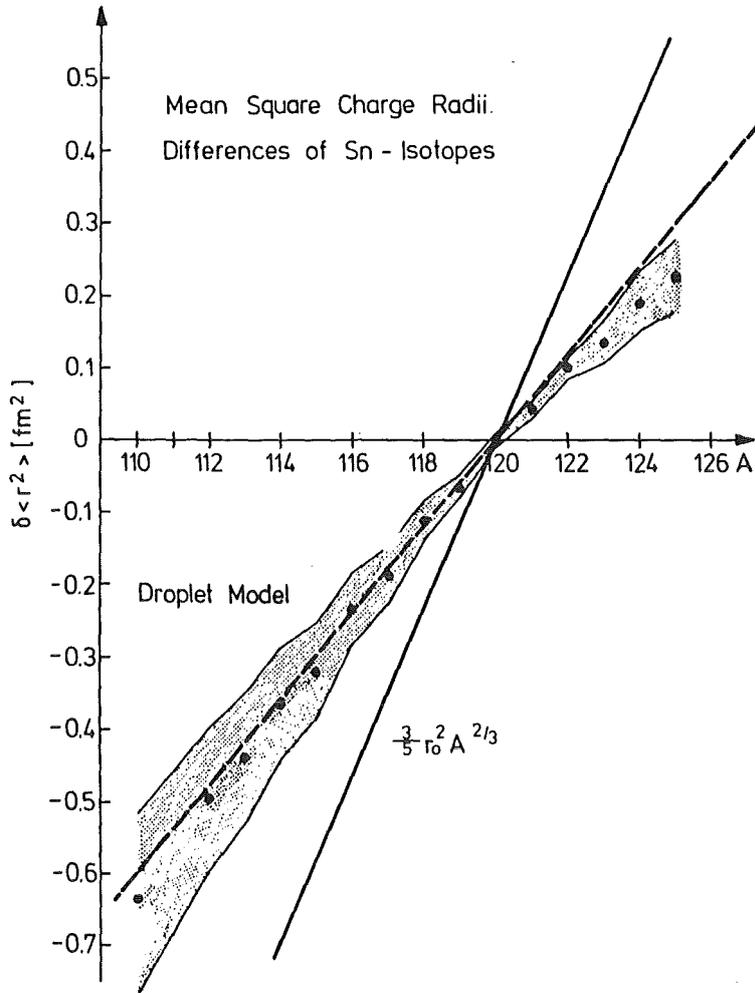


Fig. 5.6: Verlauf der mittleren quadratischen Ladungsradien in Sn. Das Fehlerband rührt nur von der Unsicherheit in der Bestimmung der Faktoren  $F_i$  und  $M_i$  her. Als Geraden sind Ergebnisse aus dem Tröpfchenmodell mit  $r_0 = 1,2$  fm und aus dem Droplet-Modell eingezeichnet.

her. Änderungen der beiden Faktoren würden nur die Ordinate strecken bzw. stauchen. Am Trend der Radien und an den relativen Abständen der Ladungsradien zueinander spielen die Fehler von  $F_i$  und  $M_i$  keine Rolle; qualitative Aussagen sind daher von ihnen nicht berührt.

In nullter Näherung dürfte das Wegnehmen oder Hinzufügen von Neutronen keinerlei Isotopieverschiebung hervorrufen, da Neu-

tronen keine Ladung haben. Allerdings sind mittlerweile kleinste Beiträge der Neutronen zur Kernladung aufgrund ihrer inhomogenen Ladungsverteilung und aufgrund relativistischer Spin-Bahn-Korrekturen bekannt /BER 72/. Diese Beiträge sind aber vernachlässigbar gegenüber anderen Effekten, die bei Zugabe oder Wegnahme von Neutronen erheblich zu Tage treten.

Haupteffekt ist die Neuordnung der Protonen im Kern bei Änderung der Neutronenzahl. Das wohl einfachste Modell für eine Änderung der Ladungsdichte ist das Tröpfchenmodell ( $R = r_0 \cdot A^{1/3}$ ,  $r_0 = 1,2\text{fm}$ ), in Fig. 5.5 und 5.6 als  $A^{2/3}$ -Gesetz eingezeichnet. Nur bei Pb kann es den nach Abschluß der magischen Neutronenschale typischerweise steil ansteigenden Verlauf der  $\delta\langle r^2 \rangle$  im Trend reproduzieren; ansonsten versagt dieses Modell.

Das derzeit wohl realistischste globale Modell, das die Rückwirkung des Einbaus von Neutronen auf die Verteilung der Protonen im Kern beschreibt und auch einen Bezug zwischen Ausdehnung und Energie des A-Nukleonensystems herstellt, ist das Droplet-Modell /MYE 77, MYE 82/. Es ist eine Erweiterung des klassischen Tröpfchenmodells und eine makroskopische, semiempirische Beschreibung des abgesättigten nuklearen Systems aus Z Protonen und N Neutronen durch Minimalisierung der makroskopischen Energie dieses Zwei-Komponentensystems.

Es muß zunächst bemerkt werden, daß die Droplet-Modell-Radien, wie sie üblicherweise angegeben werden, nicht Äquivalent-Radien einer diffusen Verteilung sind. Beschreiben wir etwa die Ladungsverteilung als Faltung einer homogen geladenen Kugel vom Radius R mit einer Gaußverteilung der Varianz  $\sigma$  (Helm's Modell)

$$\rho(r) = \int \rho_{\text{h.s.}}(\vec{r}; R) \cdot \rho_G(\vec{r}-\vec{r}'; \sigma) d\vec{r}' \quad , \quad (5.20)$$

so lassen sich, wie eine empirische Analyse feststellt /FRI 82/, die Droplet-Modell-Radien mit dem Ausdehnungsparameter R identifizieren. Folglich vernachlässigen Voraussagen des (sphärischen) Droplet-Modells über ms-Radius-Differenzen

$$\delta\langle r^2 \rangle = \frac{3}{5} \delta R^2 + 3 \delta \sigma^2 \quad (5.21)$$

die Variationen  $\delta \sigma^2$  in der Hautdicke der Verteilung. Solche Variationen enthalten Beiträge der mittleren quadratischen Deformation, d.h. von Fluktuationen der Kernoberfläche aufgrund der Nullpunktsbewegung kollektiver Schwingungen oder auch permanenter Deformationen der Kerngestalt. Mit der üblichen Multipolentwicklung des Kernradius ist der Beitrag der Deformationen durch

$$\langle r^2 \rangle_{\text{Def}} = \frac{5}{4} \langle r^2 \rangle_0 \langle \beta_L^2 \rangle \quad (5.22)$$

gegeben, wobei die ms-Deformation über alle kollektiven Zustände aller Multipolaritäten summiert ist. Die Änderung  $\delta \langle \beta_L^2 \rangle$  ist verknüpft mit der Änderung der ("nicht-energiegewichteten") Summe

$$S(EL) = \sum_{\Pi} B(EL, 0 \rightarrow nL), \quad (5.23)$$

z.B. für  $L = 2$

$$\delta S(E2) = \left( \frac{3}{4\pi} ZR^2 \right)^2 \delta \langle \beta_2^2 \rangle \quad (5.24)$$

oder allgemeiner /ESB 83/

$$\delta S(EL) = \frac{R^2}{4\pi} [(L+2) Z \langle r^{L-1} \rangle]^2 \quad (5.25)$$

In Fig. 5.5 und 5.6 ist die experimentell gefundene Variation der mittleren quadratischen Ladungsradien der Pb und Sn-Nuklide mit den Voraussagen des (sphärischen) Droplet-Modells verglichen. Es zeigt sich dabei, daß das Droplet-Modell in recht guter globaler Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen ist und

daß Variationen  $\delta\sigma^2$  (oder  $\delta\langle\beta_L^2\rangle$ ) nur eine untergeordnete Rolle spielen. In einer neuen Version des Droplet-Modells /MYE 83/ wurden die Deformationseffekte in das Modell hineingenommen, indem auf theoretische Resultate über die Kerndeformation zurückgegriffen wurde. Für letztere bestehen jedoch große Unsicherheiten. Rechnungen mit diesem neuen Modell ergaben für Sn keine Korrektur der in Fig. 5.6 eingezeichneten Geraden /LOC 84b/.

Isotop	$\delta \langle r^2 \rangle_{\text{Exp}}$ [fm <sup>2</sup> ]	$\delta \langle r^2 \rangle_0$ [fm <sup>2</sup> ]	$\delta \langle r^2 \rangle_{\text{Def}}^{\text{Exp}}$ [fm <sup>2</sup> ]	$\delta \langle r^2 \rangle_{\text{Def}}(B(E2))$ [fm <sup>2</sup> ]
112	-.497 (103)	-.4811	-.016 (103)	-.0287 (9)
114	-.368 (76)	-.3609	-.007 (76)	-.0272 (50)
116	-.237 (50)	-.2405	.003 (50)	-.0077 (2)
118	-.112 (24)	-.1202	.008 (24)	-.0069 (2)
120	.0	.0	.0	.0
122	.101 (22)	.1201	-.009 (22)	.0043 (1)
124	.192 (43)	.2399	-.048 (43)	.0218 (7)

Tab. 5.6: Vergleich von Deformationsbeiträgen zum Kernvolumeneffekt. Die benutzten B(E2)-Werte stammen von /STE 70/ und für <sup>114</sup>Sn von /KIM 75/.

Tabelle 5.6 vergleicht den "experimentellen" Beitrag  $\delta\langle r^2 \rangle_{\text{Def}}^{\text{Exp.}} = \delta\langle r^2 \rangle_{\text{Exp.}} - \delta\langle r^2 \rangle_0$  (wobei  $\delta\langle r^2 \rangle_0 = \frac{3}{5}\delta R^2$ ) mit der Abschätzung für  $\delta\langle r^2 \rangle_{\text{Exp.}}$  aus gemessenen B(E2; 0<sup>+</sup> → 2<sup>+</sup>)-Übergangswahrscheinlichkeiten /STE 70, KIM 75/ für die Sn-Isotope. Hierbei wird angenommen, daß die Änderung von S(EL) sich in den ersten angeregten Zuständen konzentriert. Der Vergleich zeigt Diskrepanzen, jedoch liegen nicht hinreichend viele  $\gamma$ -spektroskopische Daten vor, um dies unabhängig und auch im Hinblick auf den Beitrag höherer Multipolaritäten genau überprüfen zu können.

Die gemessenen elektromagnetischen Momente für die ungeraden Isotope (kleine Werte für die Kernquadrupolmomente und magnetische Momente, die recht gut mit den Werten des Einteilchenmodells übereinstimmen) unterstützen die untergeordnete Bedeutung der Deformationseffekte.

Eine Auffälligkeit, die als Mikrostruktur in der Variation der Ladungsradien entlang einer Isotopenkette zu erkennen ist, ist ein signifikantes "odd-even-staggering": der Radius des ungeraden Isotops liegt gewöhnlich näher am Wert des leichten, geraden Nachbarn. Im Falle der Pb-Nuklide ist eine bemerkenswerte Entwicklung dieses "staggerings" mit abnehmender Neutronenzahl zu beobachten. Es verschwindet praktisch am Beginn der neuen Schale, was auch für die magischen Neutronenzahlen  $N = 28, 50$  und  $82$  festzustellen ist /AUF 83/. Es ist üblich, das "staggering" durch den Parameter  $\gamma$  mit

$$\gamma = \frac{2(\langle r^2 \rangle^{A+1} - \langle r^2 \rangle^A)}{\langle r^2 \rangle^{A+2} - \langle r^2 \rangle^A}, \quad A \text{ gerade} \quad (5.26)$$

darzustellen. Die Werte für die Pb- und Sn-Nuklide sind in den Tabellen 5.1 und 5.3 gegeben. Das "odd-even-staggering" ist ein allgemeines Phänomen in der Variation der Ladungsradien, das bis jetzt theoretisch nicht befriedigend erklärt werden konnte. Auch mikroskopische Rechnungen auf der Basis der HFB-Theorie - solche Rechnungen liegen für die Pb-Isotope vor /THO 83/ (siehe Fig. 5.5) - bieten keine Erklärung. Nach der Vorstellung von Reehal und Sorenson /REE 71/ wird das Phänomen auf ein "blocking" der Grundzustandsfluktuationen durch das ungepaarte Teilchen, als einen reduzierten Wert von  $\langle \beta_L^2 \rangle$ , zurückgeführt. Sie erhalten für  $^{117}\text{Sn}$  einen theoretischen Wert für den "staggering"-Parameter  $\gamma$  von 0,85, für  $^{119}\text{Sn}$  von 0,86 und für  $^{207}\text{Pb}$  von 0,98.

Es ist offensichtlich, daß zwischen der Ausdehnung des Atomkerns und seiner Bindungsenergie ein Zusammenhang existiert. Außerhalb des Bereiches des Kernpotentials ist der Abfall der Grundzustandswellenfunktion  $\psi \propto \exp(-\sqrt{M \cdot E_B} / \hbar \cdot r)$  von der Bindungsenergie  $E_B$  bestimmt. Bei schwach gebundenen Objekten wie dem Deuteron, wo der Innenbereich nicht sehr zum Tragen kommt, ergibt sich /BRI 65/

$$\langle r^2 \rangle^{1/2} \cong \frac{1}{2} \frac{\hbar^2}{M \cdot E_B} \quad (5.27)$$

(mit  $M$  = Masse des Nukleons).

In realistischen Fällen wird jedoch der Zusammenhang komplexer und durch aufwendigere Modellbeschreibungen ( wie dem Droplet-Modell) vermittelt. Es erscheint jedoch recht nützlich, nach einfachen empirischen Relationen zu suchen. Aus einer sorgfältigen Studie der experimentellen Systematik hat Gerstenkorn /GER 79, WEN 80/ eine einfache, rein empirische Formel abgeleitet

$$\langle r^2 \rangle^{A+2} - \langle r^2 \rangle^A = -k_1 \Delta(B)^{A+2,A} + k_2, \quad (5.28)$$

die für ein Isotopenpaar mit der Neutronenzahl  $N+2$  und  $N$  gelten soll. Eine solche lineare Relation zwischen der Differenz der  $ms$ -Radien und der Differenz der Bindungsenergien je Nukleon ( $B$ ) beschreibt z.T. recht gut den experimentellen Befund für  $gg$ -Kerne. Doch für das letzte Paar vor dem Auffüllen der Schale zeigt sich eine markante Abweichung als auffälliger Schaleneffekt, der offensichtlich mit dem Sprung der Radiusänderung beim Durchgang durch den Schalenabschluß korreliert ist.

Es gibt z.Zt. theoretische Bemühungen von Hefter u.a. /HEF 84a/, empirische Relationen zwischen Bindungsenergie und  $ms$ -Radiusdifferenzen zu begründen auf der Basis eines Versuchs, mit Hilfe inverser Methoden aus experimentellen Einteilchenenergien das nukleare Potential, das für die Eigenschaften gebundener Zustände relevant ist, zu konstruieren. Unter der Annahme eines reflexionslosen Potentials (verschwindende Streuphasen) gewinnt man in der Tat als einfachste Näherung einen linearen Zusammenhang zwischen  $\Delta B$  und  $\Delta \langle r^2 \rangle$

$$\Delta \langle r^2 \rangle \propto \left( \frac{1}{B(A_2)} - \frac{1}{B(A_1)} \right) = \frac{1}{B(A_1) \cdot B(A_2)} \cdot \Delta B^{A_2, A_1} \quad (5.29)$$

da  $1/(B(A_1) \cdot B(A_2))$  in einer Isotopensequenz nur kaum variiert. Eine etwas sorgfältigere Betrachtung führt zu einer zusätzlichen  $A^{2/3}$ -Wichtung

$$\Delta \langle r^2 \rangle \propto \left( \frac{A_2^{2/3}}{B(A_2)} - \frac{A_1^{2/3}}{B(A_1)} \right) \quad (5.30)$$

Der Vergleich mit dem Experiment zeigt folgendes:  
Die simpelste Näherung führt zu einem ausgeprägten "odd-even-staggering", das aber in die "falsche Richtung" geht. Das empirisch bekannte "staggering" in den Bindungsenergien (oder Neutronenablösearbeiten) hat daher wohl kaum etwas mit dem beobachteten "staggering" der Radien zu tun. Der zusätzliche  $A^{2/3}$ -Faktor, der von der Sättigung der Kernkräfte herrührt, dämpft das "falsche staggering". Die theoretische Voraussage approximiert den Sprung beim Durchgang durch den Abschluß der Schale mit einem etwas konkaven Verlauf, die feineren Effekte vor dem Auffüllen werden jedoch nicht korrekt wiedergegeben. Dieser konkave Verlauf wird

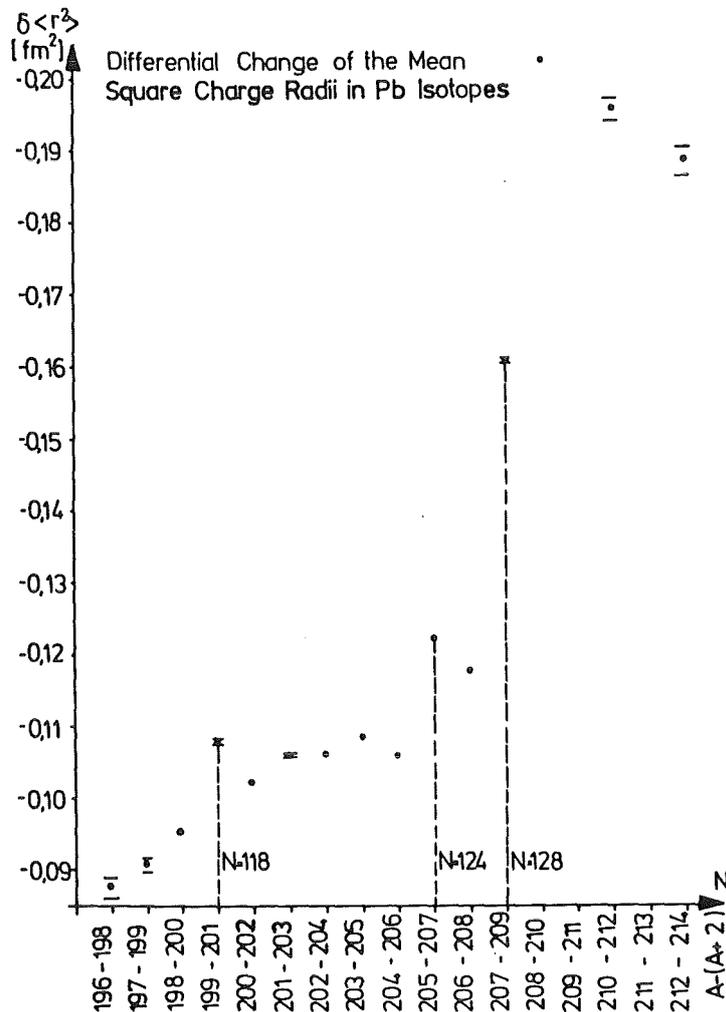


Fig. 5.7: Differentielle Darstellung der mittleren quadratischen Ladungsradien in Pb. Die Fehler stellen ausschließlich die statistischen Fehler der Messungen dar.

allerdings auch von den für Sn gerechneten Daten /HEF 84b/ eingehalten, was dem tatsächlichen Verlauf in den experimentellen Ladungsradien in Sn aber widerspricht (Fig. 5.6). Nach der Ableitung der Formeln können sich Schaleneffekte, Effekte der Deformation und der Paarkraft nur über den Weg ihres Einflusses über die Bindungsenergien manifestieren.

Feinere Effekte und Trends in der Variation der Ladungsradien werden besonders auffällig in einer differentiellen Auftragung (Brix-Kopfermann-Plot:  $\delta \langle r^2 \rangle^{A, A+2}$ ). Dies ist in Fig. 5.7 und

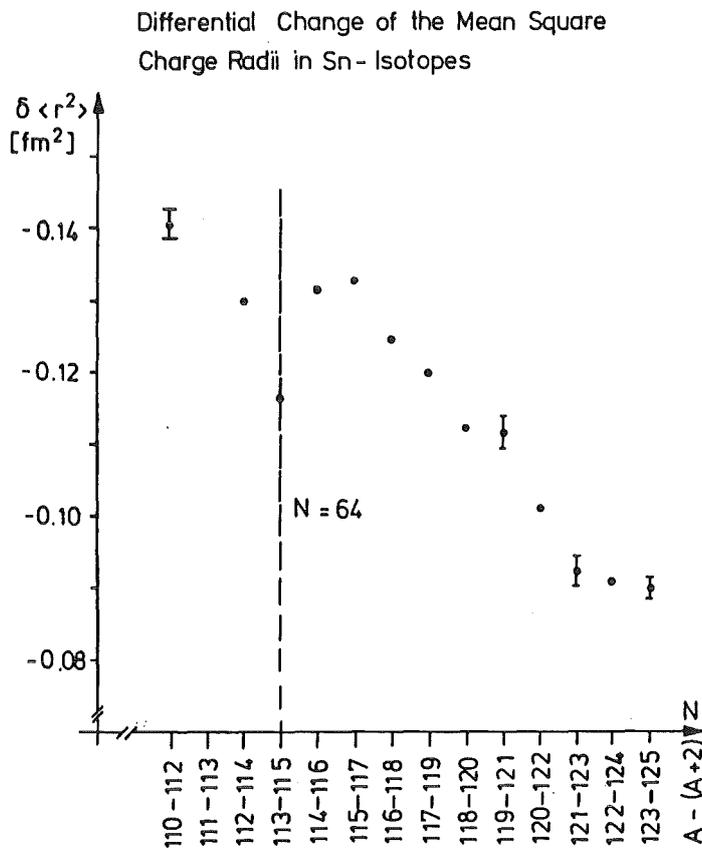


Fig. 5.8: Differentielle Darstellung der mittleren quadratischen Ladungsradien in Sn. Die Fehler stellen ausschließlich die statistischen Fehler der Messungen dar.

Fig. 5.8 dargestellt. Es ermöglicht eine größere Auflösung der Struktur der  $\delta\langle r^2 \rangle$ . Als Fehler wurden hier nur die statistischen Fehler aus der Messung eingetragen, da nur qualitative Schlüsse aus den Figuren gezogen werden sollen. Eine Änderung von  $F_1$  und  $M_1$  ergäbe auch wiederum nur eine Stauchung bzw. Streckung der Ordinate.

In Fig. 5.7 ist der steile Anstieg beim Abschluß der magischen Neutronenschale mit  $N = 126$  nochmals deutlich zu sehen. Regelmäßig treten auch bei anderen Elementen /HEI 74/ nach einem steilen Anstieg hinter magischen Schalenabschlüssen deutliche Abnahmen im Anwachsen der Ladungsradien auf, was bei Pb ebenfalls stark ausgeprägt ist. In der Gegend eines solchen Abfalls liegen auch die gemessenen Sn-Nuklide mit Neutronenzahlen zwischen 60 und 75. Der anfänglich etwas steile Abfall in der Zunahme der Ladungsradien, noch quasi aus "Erinnerung" an den magischen Neutronenschalenabschluß für  $N = 50$ , flacht sich zunehmend ab. Das bei Xe und Cs kurz vor  $N = 50$  beobachtete Anwachsen in der Zunahme der Ladungsradien /HEI 74, BEK 79/ konnte aufgrund der sehr kurzen Halbwertszeiten für Sn in dieser Gegend aus meßtechnischen Gründen nicht untersucht werden. Dieses Anwachsen in der Zunahme der Ladungsradien ist jedoch bei Pb schon weit vor dem Schalenabschluß zu verzeichnen. Hierbei verlangsamt sich aber dieses differentielle Anwachsen zwischen  $^{202}\text{Pb}$  und  $^{206}\text{Pb}$  zunächst, um sich dann schon vor dem Auffüllen der Schale sprunghaft zu beschleunigen. Wir glauben hier einen systematischen Trend zu erkennen, der sich bei den leichten Kernen in negativen Shifts (absolute Radiusverkleinerung kurz vor dem Schalenabschluß) äußert sehr deutlich in der Kette der Ca-Isotope vor dem  $N = 28$  - Schalenabschluß /AND 81/.

In Pb treten in Fig. 5.7 an zwei Isotopen,  $^{200}\text{Pb}$  und  $^{206}\text{Pb}$ , markante Sprünge im Anstieg der Ladungsradiuszunahme auf. Der Verlauf der Kernspins ungerader Pb-Nuklide zeugt nicht nur von einem sukzessiven Auffüllen der Einteilchenorbitale, sondern zeigt bei  $^{200}\text{Pb}$  und  $^{206}\text{Pb}$  das Auffüllen der  $3p_{3/2}$ - bzw.  $2f_{5/2}$ -Unterschalen. Schalenmodellrechnungen, die an  $^{208}\text{Pb}$  angepaßt sind /HUB 75/, unterstützen eine solche Deutung der kleineren Sprünge im Verlauf der ms-Radien in Pb als Unterschalenabschlüsse dieser beiden Orbitale ebenfalls.

In Sn sollten vom Standpunkt eines extremen Schalenmodells unterhalb von  $N = 64$  die Besetzung der Neutronenorbitals  $2d_{5/2}$  und  $1g_{7/2}$  überwiegen, während für  $N > 64$  vorzugsweise  $3s_{1/2}$ ,  $3d_{3/2}$  und  $1h_{11/2}$  Orbitals von den Neutronen besetzt werden. Im Gegensatz zu den Unterschalenabschlüssen in Pb mit kurzen, aber prägnanten Anstiegen ist in Sn bei  $N = 64$  ein ebenso prägnanter, aber abfallender Sprung im Absinken der Ladungsradien zu sehen (Vergl. Fig. 5.7 und 5.8), der mit einem Unterschalenabschluß gedeutet werden kann. Unterschalen-effekte in Sn-Kernen sind bereits in anderer Form bekannt /YAM 69, BÄC 81, FIC 72, WEN 81/.

ANHANG:

DER GRUNDZUSTANDSSPIN VON  $^{199}\text{Pb}$

Der Grundzustandsspin von  $^{199}\text{Pb}$  wird auf Grund von Untersuchungen des radioaktiven Zerfalls mit  $I = 5/2^-$  angegeben /LED 78/. Allerdings sollten vom Standpunkt der Systematik die  $f_{5/2}$  und  $p_{3/2}$  Quasiteilchen-Zustände energetisch fast entartet sein, und die Zuordnung  $I = 3/2$  konnte auf Grund der bislang vorliegenden Experimente nicht ausgeschlossen werden /NUC 81/. Die Annahme von  $I = 5/2$  führte in der Tat bei Untersuchungen der Hyperfeinstruktur und Isotopieverschiebung von  $^{199}\text{Pb}$  zu Schwierigkeiten. Setzt man voraus, daß sich der bereits beobachtete Trend der Isotopieverschiebung in diese Gegend fortsetzt (Schätzung  $\Delta\nu(199-208) = -9620 \pm 100$  MHz) und schätzt man die Aufspaltung mit einem A-Faktor  $\approx 1960$  MHz ( $\mu_I \hat{=} +0,65 \mu_K$ ; unter Annahme eines ähnlichen magnetischen Moments wie  $^{201}\text{Pb}$  sowie dem Vorzeichen aus den Schmidt-Linien) und  $B = 0$ , so werden mit  $I = 5/2$  die Lagen der Hyperfeinkomponenten (relativ zur Resonanz in  $^{208}\text{Pb}$ ) wie folgt erwartet:

Prognose:	Unsere Messung ergab dagegen:
$F = 3/2 : -16480$ MHz	$-17733,5 \pm 15$ MHz
$F = 5/2 : -11580$ MHz	$-4417,0 \pm 15$ MHz
$F = 7/2 : -4720$ MHz	$+3545,0 \pm 15$ MHz

Diese Diskrepanz könnte folgende Ursachen haben

- a) eine Diskontinuität im Trend im Ladungsradius, etwa als Folge einer großen Deformation
- b) der Grundzustandsspin hat nicht den Wert  $I = 5/2$
- c) eine falsche Zuordnung der Komponenten

Die Tabellen A.1 und A.2 stellen A- und B-Faktoren, Isotopieverschiebung und Werte für die elektromagnetischen Kernmomente zusammen, die sich aus verschiedenen Zuordnungen unter der Annahme  $I = 5/2$  bzw.  $I = 3/2$  ergeben. ( $I = 1/2$  scheidet aus, da drei Hyperfeinkomponenten beobachtet wurden)

Kombination			Magn.				
F =			A-Faktor	Moment	B-Faktor	$Q_s$	Is.Ve.
7/2	5/2	3/2		$[\mu_K]$		[eb]	[MHz]
a	b	c	-3598	-1.21	- 688	3.7	-8566
b	c	a	1320	.4	-11984	63.9	-4722
c	a	b	2277	.7	12673	-67.5	-5317
a	c	b	-2991	-1.0	-10293	54.9	-7681
c	b	a	3292	1.1	- 3390	18.1	-3837
b	a	c	- 300	- .1	13684	-73.0	-7086

Tab. A.1: A- und B- Faktoren sowie elektromagnetische Momente unter der Annahme  $I = 5/2$

Kombination			Magn.				
F =			A-Faktor	Moment	B-Faktor	$Q_s$	Is.Ve
5/2	3/2	1/2		$[\mu_K]$		[eb]	[MHz]
a	b	c	-5322	-1.05	- 9	.05	-9748
b	c	a	1157	.2	-8685	46.3	-3982
c	a	b	4164	.8	8694	46.3	-4874
a	c	b	-5056	-1.0	-6909	36.8	-8421
c	b	a	4608	.9	-2846	15.2	-2655
b	a	c	448	8.8	9756	-52	-7528

Tab. A.2: A- und B- Faktoren sowie elektromagnetische Momente unter der Annahme  $I = 3/2$

Wir scheiden alle jene Möglichkeiten aus, die zu zu großen Werten des spektroskopischen Quadrupolmoments führen. Dann ist jeweils nur noch die erste Zeile der beiden Tabellen zu berücksichtigen. Mit folgenden Begründungen läßt sich dann auch  $I = 5/2$  ausschließen:

- 1.) Das unter dieser Annahme aus der Hyperfeinstruktur-Aufspaltung gewonnene magnetische Moment hat einen negativen Wert von  $\mu_I = - 1.21 \mu_K$ , was für (g,u) Kerne eher der Schmidt-Linie  $j = 1 + 1/2$  zuzuordnen wäre.
- 2.) Der Wert des spektroskopischen Quadrupolmoments  $Q_s = 3.7$  ( $\pm 50 \%$ ) eb ist in dieser Kernregion einmalig groß. Er ist, wie im folgenden gezeigt wird, auch nicht konsistent mit der dabei gemessenen Isotopieverschiebung. Leitet man aus dem Quadrupolmoment  $Q_s = 3.7$  eb eine mittlere quadratische Deformation ab /THO 83/

$$\langle \beta^2 \rangle = \left( \frac{4\pi}{5Z} \right)^2 \langle r^2 \rangle_0^{-2} \left\{ \frac{5}{16\pi} \frac{(2J_i+1)(2J_i+3)}{J_i(2J_i-1)} Q_s^2 \sum_{J_f} B(E2; J_i \rightarrow J_f) \right\}$$

indem man für  $\langle r^2 \rangle_0$  den vom (sphärischen) Droplet-Modell mit  $\langle r^2 \rangle^{1/2} = 5.49$  fm vorausgesagten Wert annimmt, so ergibt sich

$$\langle \beta^2 \rangle \geq 0.07 \quad \text{oder} \quad \langle \beta^2 \rangle^{1/2} \geq 0.26$$

Dies würde zu einem Deformationsanteil der Variation des mittleren quadratischen Radius führen von

$$\delta \langle r^2 \rangle_{\text{Def}} = \frac{5}{4\pi} \langle r^2 \rangle_0 \delta \langle \beta^2 \rangle \approx \frac{5}{4\pi} \langle r^2 \rangle_0 \langle \beta^2 \rangle = 0.839 \text{ fm}^2$$

(bei Vernachlässigung der mittleren quadratischen Deformation von  $^{208}\text{Pb}$ ).

Zusammen mit der vom Droplet-Modell gut vorausgesagten Variation des sphärischen Anteils  $\delta \langle r^2 \rangle_0 = - 0.486 \text{ fm}^2$  wäre auf Grund der Annahme  $I = 5/2$  der Ladungsradius von  $^{199}\text{Pb}$  fast so

groß wie der Radius von  $^{212}\text{Pb}$

$$\delta\langle r^2 \rangle_{199-208} \geq + 0.353 \text{ fm}^2,$$

was sofort als recht unplausibel erscheint. Dies ist nun aber auch augenfällig inkonsistent mit dem direkt aus der Isotopieverschiebung (unter der Annahme  $I = 5/2!$ ) abgeleiteten Wert

$$\delta\langle r^2 \rangle_{199-208} \geq - 0.46 \text{ (6) fm}^2$$

Auf Grund dieses Widerspruchs muß die Möglichkeit  $I = 5/2$  ausgeschlossen werden.

Dagegen liefert die Analyse unter der Annahme  $I = 3/2$  einen nahezu verschwindenden B-Faktor, einen mit theoretischen Abschätzungen verträglichen Wert des magnetischen Moments und eine Variation des Ladungsradius

$$\delta\langle r^2 \rangle_{199-208} = - 0.5176 \text{ (55) fm}^2,$$

der sich in den bereits etablierten Trend einordnet.

LITERATURVERZEICHNIS

- AND 81 Andl A., KfK-Bericht 3191 (1981) und Andl A., Bekk K.,  
Göring S., Hanser A., Nowicki G., Rebel H., Schatz G.  
and Thompson R.C., Phys. Rev. C26 (1982) 2194
- AUF 83 Aufmuth P. and Haunert M., Physica 123C (1983) 109
- BAB 63 Babushkin F.A., J. Exp. Theor. Phys. USSR 44 (1963) 1661  
(Sov. Phys. JETP 17 (1963) 1118)
- BÄC 81 Bäcklin A. and Jonnson N.G., Nucl. Phys. A351 (1981)  
490
- BAI 83 Baird P.E.G., Blundell S.A., Burrows G., Foot C.J.,  
Meisel G., Stacey D.N. and Woodgate G.K., J. Phys. B:  
At. Mol. Phys 16 (1983) 2485
- BAR 77 Barret R.C. and Jackson D.F., Nuclear Sizes and  
Structures University Press (1977)
- BAU 76 Bauche J. and Champeau, Advances in Atomic and Molekular  
Physics 12 (1976)
- BEB 79 Bebelaar D., Rev. Sci. Instr. 50 (1979) 1629
- BEK 79 Bekk K., KfK-Bericht 2793 (1979) und Bekk K., Andl A.,  
Göring S., Hanser A., Nowicki G., Rebel H. and  
Schatz G., Z. Physik A291 (1979) 219
- BEM 82 Bemis C.E. and Carter H.K. (Hrsg.), Proc. Conf. on  
Lasers in Nucl. Phys., Oak Ridge, Tennessee (1982)
- BER 72 Bertozzi W., Friar J., Heisenberg J. and Negele J.,  
Phys. Lett. 41B (1972) 408
- BHA 69 Bhattacharjee S., Boehm F. and Lee P.L., Phys. Rev. 188  
(1969) 1919
- BOE 74 Boehm F. and Lee P.L., At. Data and Nucl. Data Tables 14  
No. 5,6 (1974) 610
- BOR 83 Borchert G.L., Schult O.W.B., Speth J., Hansen P.G.,  
Jonson B., Ravn H.L. and McGrory J.B., Nuovo Cimento  
73A No.3 (1983) 273

- BOY 68 Boyd G.D. and Kleinman D.A., J. Appl. Phys. 39 (1968) 347
- BRI 65 Brink D.M., Nuclear Forces, Pergamon Press, Oxford London New York (1965)
- BRI 52 Brix P., v. Buttler H., Houtermanns F.C. and Kopfermann H., Z. Physik 133 (1952) 192
- BUR 79 Burghardt B., Jitschin W. and Meisel G., Appl. Phys. 20 (1979) 141
- COU 73 Coulthard M.A., J. Phys. B6 (1973) 23 (and private communication to Wilson M.)
- DAN 81 Daniel H.U., Steiner M., Walther H., Appl. Phys. B26 (1981) 19
- DAN 82 Daniel H.U., Maurer B., Steiner M. and Walther H., Appl. Phys. Lett. 41 (1982) 313
- DAN 83 Daniel H.U., Maurer B., and Steiner M., Appl. Phys. B30 (1983) 1
- DEM 84 Dembczynski J. and Rebel H. (1984) (private Mitteilung und in Vorbereitung)
- DEM 77 Demtröder W., "Grundlagen und Techniken der Laserspektroskopie", Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York (1977)
- EHR 68 Ehrlich R.D., Phys. Rev. 173 (1968) 1088, Phys. Lett. 18 (1967) 959
- ENG 74 Engfer R., Schneuwly H., Vuilleumier J.L., Walter H.K. and Zehnder A., At. Data Nucl. Data Tables 14 (1974) 509
- ESB 83 Esbenson H. and Bertsch G.F., Phys. Rev. C28 (1983) 355
- FAB 65 Fabricius H., Freitag K. and Göring S., Nucl. Instrum. Methods 38 (1965) 64
- FAB 66 Fabricius H., Freitag K., Göring S., Hanser A. and Langmann H.-J., KFK-Bericht 511 (1966)
- FEU 76 Feurer B. und Hanser A., (1976) unver.

- FIC 72 Ficeneç J.R., Fajardo L.A., Trower W.P. and Sick J.,  
Phys. Lett. 42B (1972) 213
- FIS 74 Fischer W., Hartmann M., Hühnermann H. and Vogt H., Z.  
Physik 267 (1974) 209
- FRA 62 Fradkin E.E., J. Exp. Theor. Phys. USSR 42 (1962) 787  
(Sov. Phys. JETP 15 (1962) 550)
- FRI 81 Fricke G., Miska H. and Rychel D., (1981) (private  
Mitteilung)
- FRI 82 Friedrich J. und Voegler N., Nucl. Phys. A373 (1982)  
192
- GER 79 Gerstenkorn S., Com. on Atom. and Molec. Phys. D9  
(1979) 1
- HEF 84a Hefter E.F., Workshop on Semiclassical Methods in  
Nuclear Physics, Institut Laue-Langevin, Grenoble,  
France (1984)
- HEF 84b Hefter E.F., (1984) (private Mitteilung und Verhandl.  
DPG (VI) 19 (1984) 749
- HEI 74 Heilig K. and Steudel A., At. Data Nucl. Data Tables 14  
(1974) 613
- HUB 75 Huber M.G., "Einführung in die theoretische Kernphy-  
sik I" Inst. für Theoretische Physik, Universität  
Erlangen-Nürnberg (1975)
- HÜF 82 Hüffer W., Dissertationsschrift, Universität Köln (1982)
- KES 75 Kessler D., Mes H., Thompson A.C., Anderson H.L., Dixit  
M.S., Hargrove C.K. and McKee R.J., Phys. Rev. C11  
(1975) 1719
- KIM 75 Kim H.J., Nucl. Data Sheets 16 (1975) 107
- KIN 63 King W.H., J. Opt. Soc. Am. 53 (1963) 638
- KOP 32 Kopfermann H., Z. Physik 75 (1932) 363
- KOP 56 Kopfermann H., "Kernmomente", Akademische  
Verlagsgesellschaft Frankfurt/M, (1956)
- KUH 69 Kuhn H.G., "Atomic Spectra", Longmans 2nd edition (1969)
- LED 78 Lederer C.M. and Shirley V.S., Table of Isotopes, John  
Wiley and Sons New York (1978)

- LIN 81 Lindgren I., Timmermann A. and Matthias E., European Conference Abstracts 5A 235 (ECAP Heidelberg) (1981)
- LOC 84a Lochmann H., Eberz J., Huber G., Menges R., Ulm G., Kirchner R., Klepper O., Kühl T., Larsson P.O., Marx D. and Schardt D., Verhandl. DPG (VI) 19 (1984) 961
- LOC 84b Lochmann H. and Ulm G., (1984) (private Mitteilung)
- MAC 70 Macagno E.R., Bernow S., Cheng S.C., Devous S., Duerdoth I., Hithin D., Kast J.W., Lee W.Y., Rainwater J., Wu C.S. and Barret R.C., Phys. Rev. C1 (1970) 1202
- MAY 84 Mayer-Kuckuck T., "Kernphysik", B.G. Teubner Stuttgart (1984)
- MEG 75 Meggers W.F., Corliss C.H. and Scribner B.F., "Tables of Spectral-Line Intensities", Nat. Bur. Stand.(US), Monograph 145/PartI (1975)
- MEI 78 Meisel G., Habilitationsschrift der Universität Bonn (1978)
- MOO 71 Moore C.E., "Atomic Energy Levels", Nat. Stand. Ref. Data Ser., Nat. Bur. Stand.(US), 35/Vol.III (1971)
- MOS 80 Moscatelli F.A., Ph D thesis New York University (1980), unver.
- MOS 81 Moscatelli F.A., Redi O., Wiggins R.L. and Stroke H.H., European Conference Abstracts 5A 225 (ECAP Heidelberg) (1981)
- MYE 77 Myers W.D., Droplet Model of the Nucleus, IFI/Plenum Data Co New York (1977)
- MYE 82 Myers W.D., Conference on Lasers in Nuclear Physics, Oak Ridge, Tennessee (1982)
- MYE 83 Myers W.D. and Schmidt K.-H., Nucl. Phys. A410 (1983) 61
- NUC 81 Nuclear Data Sheets 31/3 (1981) 286
- REE 71 Reehal B.S. and Sorenson R.A., Nucl. Phys. A161 (1971) 385
- SCH 80 Schatz G., unveröffentlicher Bericht (1980)
- SCH 73 Schweimer G.W., unveröffentlicher Bericht (1973)

- SEL 69 Seltzer E.C., Phys. Rev. 188 (1969) 1916
- SIL 73a Silver J.D., Stacey D.N., Proc. R. Soc. London A332  
(1973) 129
- SIL 73b Silver J.D., Stacey D.N., Proc. R. Soc. London A332  
(1973) 139
- STE 70 Stelson P.H., McGowan F.K., Robinson R.L. and Milner  
W.T., Phys. Rev. C2 (1970) 2015
- THO 81 Thompson R.C., Hanser A., Bekk K., Meisel G. and Frölich  
D., Z. Physik A305 (1981) 89
- THO 83 Thompson R.C., Anselment M., Bekk K., Göring S., Hanser  
A., Meisel G., Rebel H., Schatz G., Brown B.A., J. Phys.  
G: Nucl. Phys. 9 (1983) 443
- TIM 80 Timmermann A., Z. Physik A296 (1980) 93
- WEN 80 Wenz R., Matthias E., Rinneberg H. and Schneider F., Z.  
Physik A295 (1980) 295
- WEN 81 Wenz R., Timmermann A. and Matthias E., Z. Physik  
A303 (1981) 87
- WIL 72 Wilson M., Phys. Rev. 176 (1972) 58

## Danksagung

Die dieser Arbeit zugrunde liegenden Experimente wurden gemeinsam mit den Herren Dipl. Phys. S. Chongkum, S. Göring, Dr. A. Hanser, Dr. H.-J. Hoeffgen, Dr. G. Meisel, Prof. Dr. H. Rebel, Prof. Dr. G. Schatz und Dr. R.C. Thompson am Institut für Kernphysik des Kernforschungszentrums Karlsruhe durchgeführt, für deren Unterstützung ich hiermit danken möchte.