

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

95-228

P6-95-228

А.Я.Анастасов, Ю.П.Гангрский, Б.Генова¹, С.Г.Земляной,
Б.К.Кульджанов², К.П.Маринова¹, Е.Н.Наджаков¹

КОНСТАНТЫ СВЕРХТОНКОГО РАСЩЕПЛЕНИЯ
В ОПТИЧЕСКОМ СПЕКТРЕ $n\bar{n}$

Направлено в журнал «Оптика и спектроскопия»

¹Университет им. К.Охридского, София

²Институт ядерной физики, Ташкент

1995

1. Введение

Гафний, как и все переходные металлы с незаполненной nd -оболочкой, имеет очень сложный и до сих пор не полностью установленный энергетический спектр электронных уровней. Этим объясняется наблюдаемый и последнее время повышенный интерес к теоретическому и экспериментальному исследованию спектра Hf [1-5]. Интерес к изучению оптических свойств изотопов гафния обусловлен и его особым местом (Z, N) в карте изотопов и связанными с этим особенностями его ядерных свойств.

Имеющиеся к настоящему времени данные об изменениях среднеквадратичных зарядовых радиусов, $\delta\langle r^2 \rangle$, полученные из оптических изотопических сдвигов (ИС) [1, 6] - с одной стороны, и из ИС в спектрах КХ-лучей [7] и мезоатомов [8] - с другой, обнаруживают разное поведение зарядового радиуса с изменением числа нейтронов. В случае ядерных моментов, магнитного дипольного и электрического квадрупольного, ситуация следующая. Магнитный дипольный момент μ определен для целого ряда изотопов Hf ядерными методами [9]; точность в большинстве случаев невысокая, а между результатами разных авторов имеются существенные различия. Последнее относится и к электрическим квадрупольным моментам Q_s ; кроме того, они определены лишь для некоторых стабильных изотопов.

Современные лазерно-спектроскопические методы дают принципиальную возможность определять параметры ядерной структуры (спины, электрические и магнитные моменты, изотопические изменения зарядовых радиусов) с высокой точностью. Это является результатом высокого оптического разрешения при измерении сверхтонкой структуры и изотопических сдвигов в атомных спектрах [10]. Однако для того чтобы из этих измерений получить точные и надежные значения $\delta\langle r^2 \rangle$ и ядерных моментов в длинных изотопических цепочках Hf, нужна прежде всего детальная информация об оптических свойствах его стабильных изотопов: об ИС и константах сверхтонкого расщепления для возможно большего числа переходов и уровней.

В наших более ранних работах [6, 11] приведены результаты систематических исследований ИС всех стабильных изотопов Hf и радиоактивного ^{182}Hf ($T_{1/2} = 9 \cdot 10^6$ лет) с целью определения изменений среднеквадратич-

них, зарядовых радиусов. В данной работе представлена новая информация о константах сверхтонкого расщепления (СТР) нижних и верхних уровней на трех оптических переходах в спектре HfI. Эта информация, полученная при использовании нового метода обработки экспериментальных результатов, позволяет судить о влиянии на эти константы эффектов второго порядка (сверхтонкая магнитная аномалия, недиагональные эффекты). Проявление этих эффектов наблюдалось, например, в оптическом спектре EuI [12].

2. Экспериментальная методика

Измерения проводились методом лазерно-индуцированной резонансной флуоресценции в атомном пучке: лазерный луч, частоту которого можно сканировать в диапазоне до 30 ГГц, пересекает коллимированный атомный пучок. Резонансная флуоресценция детектируется ФЭУ. Лазерное излучение, атомный пучок и направление сбора флуоресцентного света взаимно ортогональны. Спектр регистрируется многоканальным анализатором, работающим во временном режиме, синхронно со сканированием. Для частотной калибровки спектра используется конфокальный интерферометр Фабри-Перо с константой 150 МГц, сигнал от которого регистрируется одновременно с измеряемым спектром. Атомизация образцов производилась путем лазерного испарения. Детали установки подробнее описаны в работе [11] и в ее ссылках.

Использованы два вида образцов: а) металлический Hf натурального изотопного состава и б) прессованные таблетки из оксидов разделенных нечетных изотопов - $^{177}\text{HfO}_2$ ($\approx 82\%$) и $^{179}\text{HfO}_2$ ($\approx 72\%$).

Характеристики исследованных оптических переходов (длина волны возбуждения, $\lambda_{\text{воз}}$, энергия и конфигурация нижних и верхних уровней переходов) приведены в табл. 1. Для уменьшения фона от рассеянного лазерного излучения возбуждение атомов и регистрация спонтанно переизлученных фотонов производились на разных оптических переходах. Длины волн регистрируемого излучения, $\lambda_{\text{рег}}$, также приведены в табл. 1. В результате разумного компромисса между разрешением и чувствительностью разрешение на разных оптических переходах изменялось в диапазоне, 45 - 80 МГц. На рис. 1 представлен спектр сверхтонкой структуры (СТС) с разрешением ≈ 80 МГц на переходе с $\lambda = 594.7$ нм, отличающемся особо низкой интенсивностью. Спектр относится к ^{179}Hf со спином $I = 9/2$. Полные угловые

Таблица 1

Характеристики исследованных оптических переходов в спектре HfI: данные из таблиц работы [14].

$\lambda_{\text{воз}}$ нм	нижний уровень			верхний уровень			$\lambda_{\text{рег}}$ нм
	терм	J	E, см ⁻¹	терм	J	E, см ⁻¹	
590.3	5d ² 6s ² a ³ F	3	2356.68	5d ² 6s6p z ⁵ G ^o	3	19292.63	518.2
594.7	5d ² 6s ² a ¹ D	2	5638.62	5d ² 6s6p z ⁵ F ^o	2	22450.56	497.5
571.9	5d ² 6s ² a ³ P	2	8983.75	5d6s ² 6p z ¹ P ^o	1	26463.93	480.0

моменты F нижнего и F' верхнего уровней перехода принимают значения между 13/2 и 5/2, а спектр СТС состоит из 13 компонент: из них разрешены 9. То же самое число компонент на данном переходе имеет и СТС ¹⁷⁷Hf со спином I = 7/2. В этом случае, однако, разрешаются всего 7 компонент. Примеры измеренных спектров СТС с лучшим экспериментальным разрешением можно найти в наших более ранних работах [6,13], где представлены предварительные значения констант сверхтонкого расщепления для нечетных изотопов Hf.

3. Метод извлечения констант сверхтонкого расщепления

Основная задача при экспериментальном исследовании СТС - извлечение констант A магнитного дипольного и B электрического квадрупольного взаимодействия из экспериментальных спектров. Они позволяют определить: 1) величины, характеризующие состояния электронной оболочки, анализ которых дает возможность детально судить об электронной структуре атома; 2) ядерные величины - спин I, магнитный дипольный μ и электрический квадрупольный Q_s моменты ядра или, по меньшей мере, их отношения для двух изотопов; сверхтонкую аномалию, связанную с природой ядерных

магнитных моментов; сдвиг центра тяжести СТС одного изотопа по отношению к другому, из которого можно определить изменения СКЗР. В принципе эта задача решается следующим образом. Как известно [15], разность энергий δW_{1J} двух произвольных компонент с полными угловыми моментами F_1 и F_2 сверхтонкого расщепления данного атомного уровня с угловым моментом J определяется соотношением:

$$\delta W_{1J} = W(F_1) - W(F_2) = \frac{1}{2}A(C_1 - C_2) + B \frac{3}{8} \frac{C_1(C_1 + 1) - C_2(C_2 + 1)}{I(2I-1)J(2J-1)}. \quad (1)$$

Здесь $C = F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)$. Если квантовые числа I , J и F известны, для определения двух неизвестных констант A и B необходимы два значения δW_{1J} . Их можно определить из экспериментально измеренных

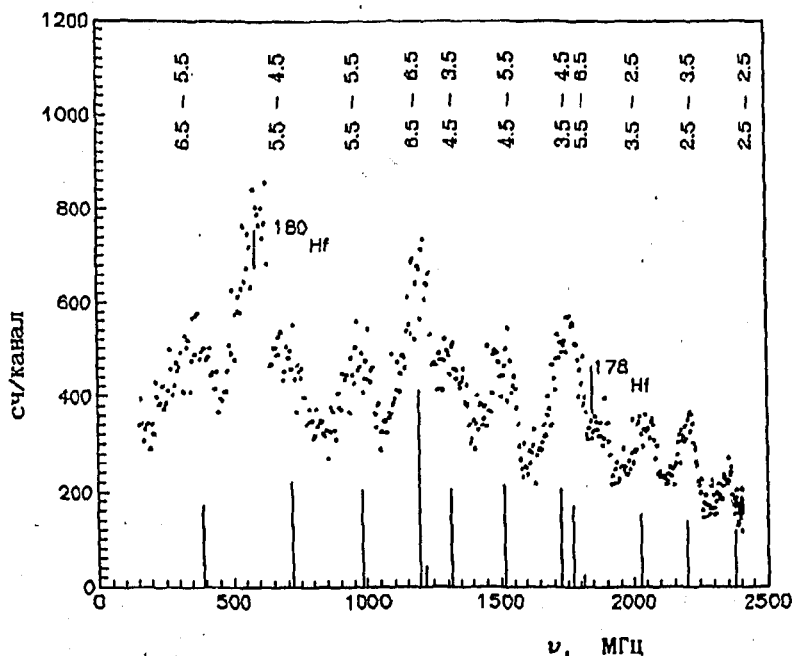


Рис. 1. Экспериментальный (точки) и расчетный (сплошные линии) спектры ^{179}Hf на оптическом переходе с длиной волны 594.7 нм. Указаны также значения (F, F') компонент СТС и положения пиков четных изотопов

положения линий в спектре СТС. Число независимых интервалов δW_{1J} обычно больше двух, и для повышения точности, с учетом всей наличной информации, применяется метод наименьших квадратов.

Реальные спектры СТС относятся к определенному оптическому переходу $J \rightarrow J'$ (J - угловой момент электронной оболочки для нижнего, J' - для верхнего уровня) и любая линия в спектре СТС характеризуется двумя квантовыми числами: F, F' . Энергетический интервал между двумя линиями $i (F_1, F'_1)$ и $j (F_j, F'_j)$ определяется очевидным способом:

$$\begin{aligned} \Delta\nu_{1j} &= \nu_1 - \nu_j = \\ &= [W(F'_1) - W(F_1)] - [W(F'_j) - W(F_j)] = \\ &= [W(F'_1) - W(F'_j)] - [W(F_1) - W(F_j)] = \delta W'_{1j} - \delta W_{1j}. \end{aligned} \quad (2)$$

(В настоящей работе энергия спектральных линий измеряется в единицах частоты.) Штрихованные величины относятся к верхнему, нештрихованные - к нижнему уровню. В общем случае равенство (2) содержит четыре неизвестные константы: A', B' - для верхнего уровня и A, B - для нижнего. Необходимо по меньшей мере 4 уравнения для их определения. Такой прямой подход связан с большими неопределенностями, с неоднозначностями значений четырех неизвестных констант при малых вариациях экспериментальных величин $\Delta\nu_{1j}$ и зачастую дает ненадежные результаты. Поэтому в каждом конкретном случае нужно найти подходящий численный метод для извлечения значений констант сверхтонкого взаимодействия.

Константы СТР всех уровней исследованных переходов неизвестны для обоих стабильных четных изотопов Hf. Это обуславливает дополнительные трудности, связанные с идентификацией F, F' экспериментальных линий (компонент) в спектре СТС. В настоящей работе разработан алгоритм, при помощи которого не только извлекаются константы A и B обоих уровней перехода, но и экспериментально зарегистрированным компонентам СТС приписываются корректные значения квантовых чисел F, F' . Он основан на методе наименьших квадратов, использует хорошо известные свойства

констант сверхтонкого взаимодействия и состоит из следующих основных процедур.

1. Каждой экспериментальной линии сопоставляется каждая пара квантовых чисел F, F' , т.е. все возможные идентификации варьируются по экспериментальным линиям.

2. Для каждой вариации определяются константы A и B обоих уровней перехода. Способ извлечения неизвестных констант сводит задачу определения 4 неизвестных к задаче определения двух неизвестных и, тем самым, повышает точность и надежность полученных результатов. Процедура следующая: переходы объединяются в группы, имеющие общий нижний (верхний) уровень. Энергетический интервал между любыми двумя линиями в каждой группе определяется лишь расщеплением верхнего (нижнего) уровня. Достаточно двух таких интервалов, чтобы извлечь константы A и B соответствующего уровня при помощи соотношения (1). Если экспериментальные данные позволяют определить данное расщепление δW_{ij} больше одного раза, в расчетах берется среднее взвешенное значение. Таким образом, максимальное число уравнений не превышает числа интервалов $(L-1)$ СТР данного уровня ($L-1 = 2I$, если $J > I$ и $L-1 = 2J$, если $I > J$), что является необходимым условием для статистической корректности расчетов.

3. Достоверность результатов оценивается двумя χ^2 -критериями. Первый — $\chi^2_{\text{МНК}}$, используемый на этапе определения констант СТР данного уровня (нижнего или верхнего для изучаемого перехода) методом наименьших квадратов (МНК) [16]. Второй — $\chi^2_{\text{СП}}$ (спектр)-применяется после вычисления констант обоих уровней. Со значениями этих констант вычисляется спектр СТС и оценивается совпадение расчетного и экспериментального спектров с помощью величины:

$$\chi^2_{\text{СП}} = \frac{1}{m-n} \sum_{i=1}^m \frac{[v_{\text{рас}}(F, F') - v_{\text{экс}}(F, F')]_i^2}{\sigma_i^2} \quad (3)$$

Здесь $[v_{\text{рас}}(F, F'), v_{\text{экс}}(F, F')]_i$ — расчетное и экспериментальное положения i -й линии в спектре СТС; σ_i — экспериментальная статистическая ошибка; m — число экспериментальных линий, n — число определяемых параметров ($n = 4$). Если число экспериментальных линий совпадает с полным возможным числом компонент СТС, вариация с наименьшим $\chi^2_{\text{СП}}$ соответствует

действительным распределениям квантовых чисел по экспериментальным линиям и реальным значениям констант СТС. Если число экспериментальных линий меньше, это не так. В зависимости от конкретной ситуации используются и другие, физически обоснованные, критерии оценки достоверности. Они основываются на экспериментальных данных о спектрах СТС двух изотопов, 1 и 2, данного элемента и на свойствах констант А и В.

В частности, для обсуждаемого здесь случая Hf используется тот факт, что в качестве первого приближения отношения констант сверхтонкого расщепления $A(1)/A(2)$ и $B(1)/B(2)$ не зависят от электронного уровня атома [15]. Для нечетных стабильных изотопов Hf эти отношения определены с большой точностью для низшего уровня a^3F_2 основного мультиплета HfI из высокоточных измерений методом АВМР [17]. С их помощью для каждой вариации, определяющей, например, $A(1)$ и $B(1)$, вычисляются $A(2)$ и $B(2)$ и, соответственно, спектр СТС второго изотопа. Расчетные значения сравниваются с экспериментальными при помощи формулы (3). Это позволяет быстро отбросить ошибочные идентификации.

Число возможных вариаций может быть очень большим (например, для случая на рис.1 $> 10^8$). Это требует много времени для выполнения расчетов. Для его уменьшения разработан алгоритм, вводящий некоторые дополнительные условия [18], основанные на 1) статистическом χ^2 -критерии и 2) определенных физических соображениях. Они позволяют отбросить статистически или физически неоправданные вариации и, таким образом, сильно уменьшить их число. Алгоритм предусматривает следующие случаи:

- все вариации, для которых два значения данного δW_{1J} , полученные из разных экспериментальных линий, отличаются больше, чем на предварительно заданную величину (обычно принимается трехкратное экспериментальное разрешение), отбрасываются;
 - все вариации, для которых $\chi_{\text{МНК}}^2$ при определении А и В для любого из двух уровней перехода больше некоторого заданного максимально допустимого значения, отбрасываются;
 - закрепленные идентификации: одну или больше пар квантовых чисел F, F' можно "закрепить" за определенными экспериментальными линиями;
 - свободные квантовые числа: им не приписывается ни одно $\nu_{\text{экс}}$ (F, F').
- Закрепленные и свободные F, F' не участвуют в вариациях; однако для

этой процедуры требуются определенные физические соображения. Например, одиночной линии с максимальной интенсивностью в спектре СТС можно приписать те значения квантовых чисел, которые по теоретическим расчетам определяют самую интенсивную линию. Если в СТС имеются линии, интенсивность которых заведомо выходит за пределы экспериментальной чувствительности, соответствующие им квантовые числа могут остаться свободными.

Описанная процедура является основой программы EXHYSPFIT (extended hyperfine splitting fit) [18].

4. Результаты

Рис. 1 демонстрирует совпадение экспериментального и расчетного спектров для перехода с $\lambda = 594.7$ нм. Расчетный спектр получен со значениями констант А и В, приведенных в табл. 2, и со следующими значениями нормированного $S = (\chi^2)^{1/2}$: $S_{\text{МНК}} = 1.49$ и $S_{\text{МНК}} = 1.14$ соответственно для нижнего и верхнего уровней перехода; $S_{\text{СП}} = 1.51$. Значения S близки к теоретическому пределу $S = 1$, достижимому при наличии достаточного числа экспериментальных данных и при отсутствии систематических ошибок, что указывает на надежность полученных значений констант сверхтонкого расщепления.

В табл. 2 систематизированы все результаты по сверхтонкому расщеплению Hf, полученные на лазерном спектрометре в Лаборатории ядерных реакций ОИЯИ, а в табл. 3 представлены отношения констант А или В для обоих стабильных нечетных изотопов Hf. Небольшие различия в значениях этих отношений для разных уровней, в том числе и по отношению к нижнему уровню a^3F_2 основного мультиплетта Hf из [17], находятся в пределах ошибки. То же самое относится и к значениям отношений магнитных дипольных и электрических квадрупольных моментов обоих рассматриваемых изотопов, полученных методом АВМР или чисто ядерными методами. Согласно систематике [9] и работе [17] они имеют следующие значения:

$$g_I(177)/g_I(179) = -1.5918(35) \quad \text{и} \quad Q_S(177)/Q_S(179) = 0.882(11) ,$$

где $g_I = \mu/I$. Видно, что в отличие от других случаев (см. , например, [12]) возможное влияние эффектов второго порядка незначительное: оно

Таблица 2

Константы магнитного дипольного A и электрического квадрупольного B взаимодействия для исследованных уровней в Hg I

Уровень, см^{-1}	$A(177)$, МГц	$B(177)$, МГц	$A(179)$, МГц	$B(179)$, МГц
2356.68	81.03(29)	800.3(5.8)	-50.8(2)	903.0(7.0)
5638.62	74.9(8)	-786.1(32.6)	-47.2(4)	-911.5(5.8)
8983.75	70.51(24)	-1208.5(5.4)	-44.3(4)	-1366.8(6.8)
19292.69	152.2(4)	1821.6(7.4)	-95.5(1.1)	2055.7(25.1)
22450.56	155.9(8)	103.0(1.1)	-98.1(3)	119.5(4.7)
26463.93	-20.55(19)	692.0(1.4)	12.9(2)	782.7(1.0)

Таблица 3

Отношения констант сверхтонкого расщепления для нечетных изотопов Hg

уровень, см^{-1}	2356.68	5638.62	8983.75	0.00 ^{*)}
$A(177)/A(179)$	-1.595(8)	-1.587(21)	-1.592(15)	-1.58805
$B(177)/B(179)$	0.886(9)	0.862(35)	0.884(6)	0.83492
уровень, см^{-1}	19292.69	22450.56	26463.93	усредненные из этой работы
$A(177)/A(179)$	-1.594(18)	-1.589(9)	-1.593(29)	-1.592(5)
$B(177)/B(179)$	0.886(11)	0.862(48)	0.884(2)	0.8840(18)

^{*)} из работы [17].

ограничивается неопределенностями и не превышает 0.3% и 4% по отношению к магнитным дипольным и электрическим квадрупольным константам соответственно.

В итоге нами определены с высокой точностью (типичной для метода лазерно-индуцированной резонансной флуоресценции в атомном пучке) константы СТР обоих стабильных нечетных изотопов для шести уровней в спектре Hg I . Таким образом, эти переходы могут быть рекомендованы для изучения ядерных моментов (или их отношений) в изотопических цепочках гафния, содержащих и радиоактивные изотопы. Экспериментальные значения этих констант могут быть использованы для сравнения с расчетными значениями из различных методов расчета и приближений, что будет играть существенную роль для более глубокого понимания атомной структуры.

Предложенный метод анализа СТС расширяет круг оптических переходов, при изучении которых надежным способом может быть извлечена информация о константах СТР обоих уровней перехода. Разработан метод и составлена программа для персонального компьютера: EHNUSPFI [18].

Соавторы К. П. Маринова и Е. Г. Наджаков благодарят Болгарский национальный фонд по науке за финансовую поддержку (грант НФ-17).

Литература

1. Aufmuth P., Kirsch R., Steudel A. et al. - Z. Phys., 1987, v. D7, p.153.
2. Werner A., Zimmermann D. - Hyp. Int., 1981, v. 9, p.197.
3. Zimmermann D., Werner A., Nunnemann A. - Nucl. Sci. Res. Conf. Ser., 1982, v.3, p.287.
4. Baumann P., Kuszner D., Nunnemann A. et al. - In: 2nd ECAMP Book of Abstracts. A.E. de Vries, H.J. van der Wiel (eds.). Amsterdam: Free University, 1985, p.13.
5. Schecker J., Berges A., Das J. et al. - Phys.Rev., 1992, v. A46, p.3730.
6. Anastassov A., Gangrsky Yu.P., Kul'djanov B.K. et al. - Z. Phys., 1993, v. A348, p.177.
7. Bhattacharjee S.K., Boehm F., Lee P.L. - Phys.Rev., 1969, v. 188, p.1919.
8. Tanaka Y., Steffen R.M., Shera E.B. et al. - Phys.Rev., 1984, p.1919.

- v. C30, p.350.
9. Raghavan P. - At. Data Nucl. Data Tables, 1989, v. 42, p.189.
 10. Otten E.W. - in: Treatise on Heavy-Ion Science. Nuclei Far from Stability, 1989, v. 8, p.517.
 11. Анастасов А.Я., Гангровский Ю.П., Земляной С.Г. и др. - ЖЭТФ, 1994, т. 105, с.250.
 12. Kronfeld H.D., Weber D.J., Dembczynski J. et al. - Phys.Rev., 1991, v. A44, p.5737.
 13. Anastassov A., Gangrsky Yu.P., Kul'djanov B.K. et al. - Z.Phys., 1992, v. D25, p.1.
 14. Moore C.E. Atomic energy levels III. - Washington: National Bureau of Standards, 1958.
 15. Kuhn H.G. Atomic spectra. - London: Longmans, 1969.
 16. Brandt S. Statistical and computational methods of data analysis. - Amst.-London-N.Y.: North-Holland, 1970.
 17. Büttgenbach S., Herschel M., Meisel G. et al. - Z.Phys., 1973, v. 260, p.157.
 18. Genova B., Ivanov V., Marinova K.P. - Report. Bulgarian foundation for science. Grant No F17- 2003. Sofia: 1993.

Рукопись поступила в издательский отдел
24 мая 1995 года.