

# Messungen der druckabhängigen Relaxationszeiten der Ausrichtung (alignment) einiger durch Ionenstoß angeregter Helium-Singulettzustände \*

W. DRTIL

I. Physikalisches Institut der Justus-Liebig-Universität Gießen

(Z. Naturforsch. 24 a, 350—358 [1969]; eingegangen am 22. Dezember 1968)

Zur Bestimmung der Druckabhängigkeit der Relaxationszeiten der Ausrichtung (alignment) der He 3<sup>1</sup>P-, 4<sup>1</sup>P-, 3<sup>1</sup>D-, 4<sup>1</sup>D- und 5<sup>1</sup>D-Zustände in Abhängigkeit vom Heliumdruck wurden Hanle-Effekt-Messungen bei Ionenstoßanregung durchgeführt. Durch Extrapolation ergaben sich die natürlichen Lebensdauern der untersuchten Zustände zu  $\tau(3^1P) = (2,0 \pm 0,8)$  ns (1,7 ns);  $\tau(4^1P) = (4,0 \pm 0,6)$  ns (3,9 ns),  $\tau(3^1D) = (20,5 \pm 0,9)$  ns (15,4 ns),  $\tau(4^1D) = (38,0 \pm 2)$  ns (37,8 ns),  $\tau(5^1D) = (68 \pm 7)$  ns (72,7 ns). Außerdem konnten aus der Druckabhängigkeit der Relaxationszeiten der 3<sup>1</sup>D-, 4<sup>1</sup>D- und 5<sup>1</sup>D-Zustände die Wirkungsquerschnitte der Zerstörung der Ausrichtung (alignment) durch Stöße mit Atomen im angeregten Zustand und Atomen im Grundzustand ermittelt werden:

$$\bar{\sigma}^{(2)}(3^1D) = 6 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2, \quad \bar{\sigma}^{(2)}(4^1D) = 4 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2, \quad \bar{\sigma}^{(2)}(5^1D) = 7 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2 \quad (T = 297 \text{ K}).$$

Das Ionenstoßleuchten atomarer Gase ist unter bestimmten Anregungs- und Beobachtungsbedingungen teilweise polarisiert<sup>1</sup>. Die Ionenstoßrichtung stellt eine Vorzugsrichtung der Anregung dar und führt zu einer Ausrichtung (alignment) im angeregten Zustand. Aus dem depolarisierenden Einfluß eines magnetischen Feldes, HANLE-Effekt<sup>2</sup> (zero field level-crossing), ist bei bekanntem Landé-Faktor die Relaxationszeit des angeregten Atomzustandes bestimmbar. Hanle-Effekt-Messungen wurden bisher im wesentlichen nur bei optischer Anregung und bei Elektronenstoßanregung<sup>3</sup> durchgeführt. Viele Zustände können mit optischer Anregung, bedingt durch die Auswahlregeln, nicht direkt besetzt werden. Die Stoßanregung, die an diese Auswahlregeln nicht gebunden ist, ermöglicht es, solche Zustände direkt anzuregen und zu untersuchen. Zur Messung kleiner Lebensdauern ( $\tau \sim 1$  ns) erfordert diese Methode Magnetfeldstärken bis zu 150 Gauß. Magnetische Feldstärken dieser Größenordnung haben bei einer Elektronenstoßanregung mit einer Anregungsenergie von  $\sim 50$  eV wegen des geringen Krümmungsradius eines anregenden Elektronenstrahles jedoch den Verlust der Vorzugsrichtung der Anregung zur Folge. Dieser Einfluß wird durch die Verwendung der Ionenstoßanregung vermieden.

\* Auszug aus D 26.

<sup>1</sup> F. J. DE HEER, *Advan. Atomic and Molecular Physics*, Vol. 2, Academic Press, New York 1966, S. 327.

<sup>2</sup> W. HANLE, *Z. Phys.* **30**, 93 [1924]; *Ergeb. Exakt. Naturw.* **4**, 214 [1925]. — A. C. MITCHELL u. M. W. ZEMANSKY, *Resonance Radiation and Excited Atoms*, Cambridge University Press 1934, Chapt. 5.

Das Ziel der vorliegenden Untersuchungen war die Messung der Relaxationszeitverlängerung des 3<sup>1</sup>P- und 4<sup>1</sup>P-Zustandes bedingt durch die kohärente Vielfachstreuung und die Bestimmung der Wirkungsquerschnitte für die Zerstörung der Ausrichtung (alignment) des 3<sup>1</sup>D-, 4<sup>1</sup>D- und 5<sup>1</sup>D-Zustandes durch Stöße mit Atomen im Grundzustand und Atomen im angeregten Zustand.

## 1. Theorie

Der Relaxationsprozeß angeregter Zustände kann mit Hilfe zweier Relaxationszeiten  $\tau^{(1)}$  und  $\tau^{(2)}$ , denen eine einfache physikalische Bedeutung zukommt, beschrieben werden<sup>4</sup>. Während  $\tau^{(1)}$  die Relaxationszeit der Orientierung darstellt, ist  $\tau^{(2)}$  als die der Ausrichtung eines angeregten Zustandes zu bezeichnen. Die Anregung durch Elektronen- bzw. Ionenstoß führt zu einer solchen Ausrichtung im angeregten Zustand, so daß aus Hanle-Effekt-Messungen die Relaxationszeit  $\tau^{(2)}$  der Ausrichtung bestimmt werden kann.

Die Form des Hanle-Effekt-Signales<sup>5</sup> (zero field level-crossing) wurde von einigen Autoren aus der Breit-Formel abgeleitet. Entsprechend der hier verwendeten geometrischen Anordnung (Abb. 1) mit

<sup>3</sup> H. H. STROKE, *Physics Today* **19**, 55 [1966].

<sup>4</sup> O. NÉDÉLEC, *Thèses, l'Université de Grenoble*, Mai 1966.

<sup>5</sup> G. BREIT, *Rev. Mod. Phys.* **5**, 91 [1933]. — P. FRANKEN, *Phys. Rev.* **121**, 508 [1961]. — M. E. ROSE u. R. L. CARAVILLANO, *Phys. Rev.* **122**, 1185 [1961]. — W. HAPPER u. E. B. SALOMAN, *Phys. Rev.* **144**, 7 [1966]; **160**, 23 [1967].



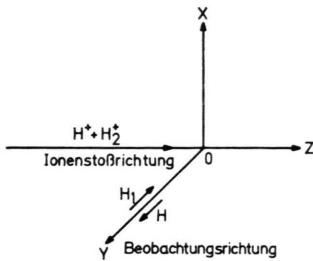


Abb. 1. Schematische Darstellung der experimentellen Anordnung;  $H$  = variables Magnetfeld,  $H_1$  = konstantes Magnetfeld.

der Ionenstoßrichtung in  $z$ - und der Beobachtung parallel zum depolarisierenden magnetischen Feld  $H$  in  $y$ -Richtung, wird die Magnetfeldabhängigkeit des Polarisationsgrades durch eine Lorentz-Kurve beschrieben ( $H_1 = 0$ ).

$$\frac{I_{\parallel} - I_{\perp}}{I_{\parallel} + I_{\perp}} = P = \frac{P_0}{[1 + (2 g_J \mu_0 H / \hbar \Gamma^{(2)})^2]} \quad (1)$$

$I_{\parallel}$  ist die parallel zur Stoßrichtung polarisierte Intensitätskomponente und  $I_{\perp}$  ist die senkrecht zur Stoßrichtung polarisierte Intensitätskomponente des Stoßbleuchtens.  $P_0$  bezeichnet den Polarisationsgrad im Magnetfeld  $H = 0$  [Gauß] und  $P$  den im Magnetfeld  $H$ ,  $g_J$  ist der Landé-Faktor des angeregten Zustandes,  $\mu_0$  das Bohrsche Magneton und  $\Gamma^{(2)} = 1/\tau^{(2)}$  die reziproke Relaxationszeit der Ausrichtung des angeregten Zustandes. Bei konstanter Gesamtintensität  $I_{\parallel} + I_{\perp}$  folgt daraus:

$$I_{\parallel}(H) - I_{\perp}(H) \sim \left[ 1 + \left( \frac{2 g_J \mu_0 H}{\hbar \Gamma^{(2)}} \right)^2 \right]^{-1}. \quad (2)$$

Aus der Halbwertsbreite  $\Delta H_{(1/2)}$  ergibt sich die Relaxationszeit  $\tau^{(2)}$  des angeregten Zustandes zu

$$\tau^{(2)} = \frac{1}{\Gamma^{(2)}} = \frac{\hbar}{2 g_J \mu_0 \Delta H_{(1/2)}}. \quad (3)$$

Die Druckabhängigkeit dieser reziproken Relaxationszeit kann in der folgenden Form dargestellt werden<sup>6</sup>:

$$\Gamma^{(2)} = \Gamma \left( 1 - \sum_i x_i \alpha_i^{(2)} \Gamma_i / \Gamma \right) + n \langle v \rangle \bar{\sigma}^{(2)}. \quad (4)$$

und beschreibt im zweiten Term der rechten Seite  $\sum_i x_i \alpha_i^{(2)} \Gamma_i$  den Einfluß der kohärenten Vielfachstreuung<sup>7</sup> im dritten Term  $n \langle v \rangle \bar{\sigma}^{(2)}$  den der Zer-

störung der Ausrichtung durch Stöße mit anderen Atomen. Der Grenzwert für kleine Gasdichten ist gleich der natürlichen Breite  $\Gamma$  des angeregten Zustandes und gleich der reziproken natürlichen Lebensdauer  $\tau$ . Der Index  $i$  bezeichnet den  $i$ -ten Übergang aus dem angeregten Zustand, während  $\Gamma_i / \Gamma$  das Verzweigungsverhältnis angibt. Der Faktor  $\alpha_i^{(2)}$  wurde von SALOMAN und HAPPER<sup>5</sup> tabelliert. Die Photonen-einfangwahrscheinlichkeit  $x_i$ , eine Funktion der Gasdichte, ist für die Druckabhängigkeit der kohärenten Vielfachstreuung verantwortlich. Die Anzahl der Atome/cm<sup>3</sup> ist mit  $n$  bezeichnet,  $\langle v \rangle = 4(kT/\pi m)^{1/2}$  ist die mittlere relative Geschwindigkeit einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung<sup>8</sup> und  $\bar{\sigma}^{(2)}$  der mittlere Wirkungsquerschnitt für die Zerstörung der Ausrichtung.

Theoretische Untersuchungen zur kohärenten Vielfachstreuung durch eine ebene Gasschicht wurden 1959 von BARRAT<sup>7</sup> durchgeführt. Mit der Annahme einer für alle Atome gleichen thermischen Geschwindigkeit  $v_0$  ist die Druckabhängigkeit durch

$$x_i = 1 - \exp \left\{ - \frac{\pi^2 g_2 \Gamma_i}{2 g_1 k_i^3 v_0} \cdot L \cdot n_i \right\} \quad (5)$$

gegeben.  $g_1$  und  $g_2$  sind die statistischen Gewichte des unteren und oberen Zustandes,  $\lambda_i = 2\pi/k_i$  ist die Wellenlänge des Überganges,  $v_0$  die Geschwindigkeit der Atome,  $L$  der effektive Radius (charakteristische Gefäßdimension) des Stoßraumes und  $n_i$  die Zahl der Atome pro cm<sup>3</sup> im Zustand  $i$ .

Eine Erweiterung der Theorie gelang D'YAKONOV und PEREL<sup>7</sup>, indem sie die Annahme einer gleichen Geschwindigkeit  $v_0$  aller Atome in der Barratschen Theorie durch die Annahme einer Maxwell'schen Geschwindigkeitsverteilung ersetzen. Diese Untersuchung führte für den Fall, daß der angeregte Zustand einen Gesamtdrehimpuls  $j_1 = 1$  und der Grundzustand  $j_0 = 0$  besitzt, zu dem folgenden Ergebnis

$$\Gamma^{(2)} = \Gamma \left( 1 - \frac{7}{10} \left[ 1 - \frac{75}{64} \frac{l_0}{L} \left\{ \pi \ln \frac{L}{l_0} \right\}^{-1/2} \right] \right) \quad (6)$$

mit  $l_0 = 8\pi^{3/2} v / (3n\lambda^3 \Gamma)$  für  $L \gg l_0$ .

Für große Gefäßdimensionen  $L$  und Gasdichten  $n$  liefern beide Theorien den gleichen Grenzwert  $\Gamma_{\infty}^{(2)} = 0,3 \Gamma$ . Dagegen unterscheiden sich die Ergeb-

<sup>6</sup> D. A. LANDMAN, Phys. Rev. **173**, 33 [1968].

<sup>7</sup> J. P. BARRAT, Thèses, l'Université de Paris, März 1959. — M. I. D'YAKONOV u. V. I. PEREL, Soviet Phys.-JETP **20**, 997 [1965].

<sup>8</sup> Für eine Maxwell-Boltzmann-Verteilung gilt<sup>6</sup>:

$$\langle v^n \rangle = \frac{2}{V\pi} \left( \frac{4kT}{m} \right)^{n/2} \Gamma \left( \frac{n+3}{2} \right).$$

<sup>9</sup> M. I. D'YAKONOV u. V. I. PEREL, Soviet Phys.-JETP **21**, 227 [1965].

nisse im Bereich mittlerer Gasdichten  $n$  bzw. Gefäßdimensionen  $L$ .  $\tau^{(2)}$  fällt nach der Barratschen Theorie mit abnehmendem Druck steiler als nach der Theorie von D'Yakonov und Perel ab. Diese Abweichung ergibt sich aus den unterschiedlichen Annahmen bezüglich der Geschwindigkeitsverteilung der Atome.

Wenn der Druck  $p$  so weit erhöht wird, daß die Bedingung  $^9 n \lambda^3 \ll 1$  nicht mehr erfüllt ist, kann der Einfluß der kohärenten Vielfachstreuung gegenüber dem der Relaxationszeitverkürzung vernachlässigt werden. Aus der linearen Druckabhängigkeit läßt sich dann der Wirkungsquerschnitt  $\bar{\sigma}^{(2)}$  ermitteln. Bei der Untersuchung solcher Zustände, die nicht Resonanzzustände sind, entfällt der 2. Term der Gl. (4) für die kohärente Vielfachstreuung. In diesen Fällen ist es möglich, den Wirkungsquerschnitt  $\bar{\sigma}^{(2)}$  aus Messungen bei niedrigeren Drucken zu bestimmen.

## 2. Versuchsanordnung

VAN ECK, DE HEER und VAN DEN BOS<sup>10</sup> sowie SCHARMANN und SCHARTNER<sup>11</sup> untersuchten in Analogie zu den Experimenten von SKINNER<sup>12</sup> et al. den Polarisationsgrad des Stoßleuchtens von Helium in Abhängigkeit von der Energie (5 keV – 1 MeV) stoßender H-Atome,  $H^+$ ,  $H_2^+$ - und  $H_3^+$ -Ionen. Die gemessenen Abhängigkeiten der Polarisationsgrade von der Stoßenergie der  $H^+$ - und  $H_2^+$ -Ionen zeigen für die verschiedenen Übergänge des Helium-Singulett-Spektrums ein Maximum des Polarisationsgrades zwischen 10 und 20 keV. Mit steigender Stoßenergie nimmt der Polarisationsgrad ab und nähert sich für Energien  $E > 1$  MeV einem negativen Grenzwert<sup>13</sup>. Eine Betrachtung der Anregungsquerschnitte zeigt, daß die Maxima der Polarisationsgrade wie z. B. bei der Protonenstoßanregung schon bei Energien unterhalb der maximalen Anregungsquerschnitte erreicht werden. Aus zahlreichen Messungen ist bekannt, daß der Polarisationsgrad unterhalb eines Grenzdruckes  $p_g$  vom Druck des Gases unabhängig ist. Oberhalb dieses Grenzdruckes nimmt der Polarisationsgrad mit steigendem Druck ab. Die

Auswahl der Anregungsenergie, der Stoßenergie der  $H^+$ - und  $H_2^+$ -Ionen, zu 15 keV wurde der energetischen Lage des Polarisationsgradmaximums entsprechend getroffen.

### 2.1. Ionenquelle und Nachbeschleunigung

Die Wasserstoffionen wurden in einer Hohlanodenentladung (Abb. 2) bei einem Druck von ungefähr  $10^{-3}$  Torr erzeugt<sup>14</sup>. Durch ein Magnetfeld parallel zur Achse der zylindrischen Anode wurde die Ionisationsdichte erhöht. Die Betriebsdaten der Entladung waren: Entladungsspannung  $U = 5$  kV, Entladungsstrom  $I = 20$  mA. Das Ionengemisch, 50%  $H^+$ - und 50%  $H_2^+$ -Ionen, konnte durch eine Öffnung ( $\phi = 4$  mm) in der Mantelfläche des Wolfram-Anodenzyinders aus dem Entladungsplasma senkrecht zur Zylinderachse mit Hilfe einer Extraktionsspannung von 4 kV abgesaugt und durch ein Dreielektrodenlinsensystem fokussiert werden. Die Anode der Entladung war auf ein Potential von +15 kV gegen Erdpotential gelegt.

In der Nachbeschleunigungsstrecke wurde der Ionenstrahl mit Hilfe zweier Rohrlinsen fokussiert und die Ionen auf eine Endenergie von 15 keV beschleunigt. Dazu notwendigen Potentiale wurden den Rohrelektroden über einen Spannungsteiler zugeführt.

### 2.2. Druckstufe

Um die Einflüsse des Restgases in der Nachbeschleunigungsstrecke auf den Ionenstrahl, wie z. B. die Defokussierung durch Streuung, gering zu halten, mußte ein Restgasdruck von  $p_R < 2 \cdot 10^{-5}$  Torr durch Öl-Diffusionspumpen (350 l/sec) aufrechterhalten werden. Zur Untersuchung des Stoßleuchtens war dagegen ein maximaler Druck von  $p = 5 \cdot 10^{-2}$  Torr in der Stoßkammer erwünscht. Um dieses Druckgefälle zwischen der Nachbeschleunigungsstrecke und dem Stoßraum aufrechterhalten zu können, wurde dazwischen eine Druckstufe eingebaut.

### 2.3. Stoßraum

Der Ionenstrahl gelangte durch eine Düse ( $\phi = 3$  mm) in den Stoßraum. Hinter dem Beobachtungsbereich wurde der Ionenstrom ( $I_1 \sim 12 \mu A$ ) mit Hilfe eines Faraday-Bechers gemessen und seine Konstanz während der Messung überprüft. Zwei Blenden schirmten den Beobachtungsbereich gegen Einflüsse elektrischer Felder und Sekundärelektronen ab. Das Helium wurde durch ein Dosierventil in den Stoßraum eingelassen. Das Druckgleichgewicht zwischen dem Gasverlust an der Düse zur Druckstufe und dem eingelassenen Gas wurde

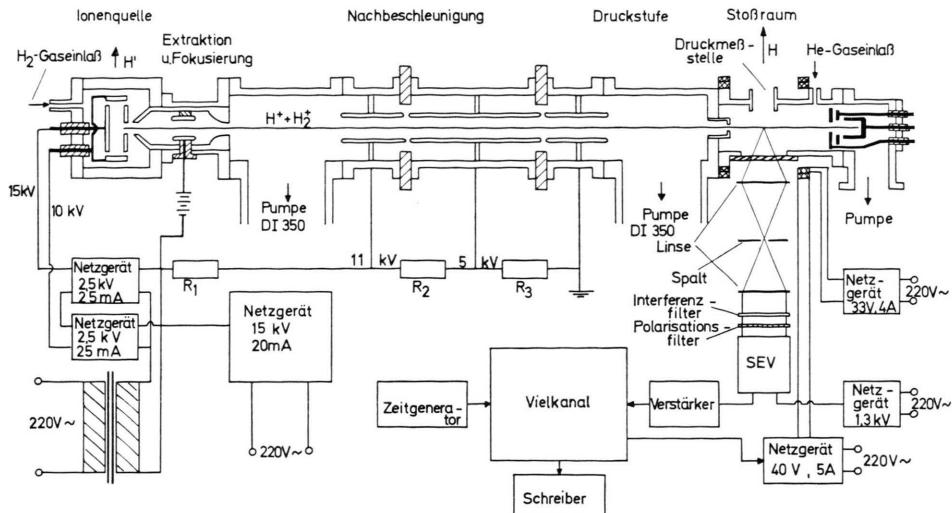
<sup>10</sup> J. VAN ECK, F. J. DE HEER u. J. KISTEMAKER, *Physica* **30**, 1171 [1964]. — J. VAN DEN BOS, Thesis, Universität Amsterdam 1967.

<sup>11</sup> A. SCHARMANN u. K.-H. SCHARTNER, *Phys. Letters* **26 A**, 51 [1967]; **27 A**, 43 [1968].

<sup>12</sup> H. W. B. SKINNER, *Proc. Roy. Soc. London* **112 A**, 642 [1926]. — H. W. B. SKINNER u. E. T. S. APPLEYARD, *Proc. Roy. Soc. London* **117 A**, 224 [1927].

<sup>13</sup> I. C. PERCIVAL u. M. I. SEATON, *Phil. Trans. Roy. Soc. London* **251**, 113 [1958]. — A. SCHARMANN u. K.-H. SCHARTNER, *Z. Phys.* **219**, 55 [1969].

<sup>14</sup> C. F. BARNETT et al., *Rev. Sci. Instr.* **24**, 394 [1953].

Abb. 2. Versuchsanordnung (Pumpstutzen um  $90^\circ$  gedreht).

mit einem Heraeus Jonivac 2 direkt über dem Beobachtungsbereich gemessen. Der Fehler der Druckmessung kann zu 20% angegeben werden.

#### 2.4. Magnetfeld und Nachweisoptik

Mit Spulen in Helmholtz-Anordnung wurde ein variables Magnetfeld  $H$  und ein konstantes Magnetfeld  $H_1$  senkrecht zur Ionenstrahlrichtung und parallel

zur Beobachtungsrichtung erzeugt. In einer entsprechenden Anordnung wurden außerdem das Erdmagnetfeld und das störende Streufeld des Ionenquellenmagneten auf 50 mG kompensiert.

Die Beobachtungsoptik bestand aus einer 1 : 1-Abbildung eines Ausschnittes des Anregungsbereiches in der Stoßkammer auf eine Zwischenblende und einer weiteren Linse, die ein Parallelstrahlbündel herstellte. Im parallelen Strahlengang (Abb. 2) befanden sich

Typ					H.W.	$\lambda_{\max}$
$5^1S - 2^1P$	B 11	$5^1S - 2^1P$	$5^1D - 2^1P$	$4^3D - 2^3P$	9 Å	4438 Å (BA)
	$\lambda$	4438 Å	4388 Å	4471 Å		
	$T$	55%	< 1%	1%		
$3^1P - 2^1S$	B 11	$4^1D - 2^1P$	$3^1P - 2^1S$	$4^1S - 2^1P$	12 Å	5019 Å
	$\lambda$	4922 Å	5016 Å	5048 Å		
	$T$	< 4%	39,5%	3%	(BA)	(BA)
$4^1P - 2^1S$	B 11	$4^1P - 2^1S$	$5^3D - 2^3P$	$3^3P - 2^3S$	20 Å	3965 Å
	$\lambda$	3965 Å	4026 Å	3888 Å		
	$T$	29%	< 1%	< 1%	(BA)	(BA)
$3^1D - 2^1P$	B 10	$3^1D - 2^1P$	$3^3S - 2^3P$	$3^1S - 2^1P$	70 Å	
	$\lambda$	6678 Å	7065 Å	7281 Å		
	$T$	52%	< 1%	< 1%		
$4^1D - 2^1P$	B 10	$4^1D - 2^1P$	$3^1P - 2^1S$	$4^1S - 2^1P$	39 Å	
	$\lambda$	4922 Å	5016 Å	5048 Å		
	$T$	71%	< 0,4%	< 1%		
$5^1D - 2^1P$	B 11	$5^1D - 2^1P$	$5^1S - 2^1P$	$4^3D - 2^3P$	13,5 Å	4392 Å (BA)
	$\lambda$	4388 Å	4438 Å	4471 Å		
	$T$	54,5%	< 1%	< 5%		
	$T_{BA}$	48 %	< 1%	< 4%		

Tab. 1. Transmissionswerte der verwendeten Interferenzfilter. Der Index BA weist auf die Angaben der Herstellerfirma Baird Atomic hin.

ein Interferenzfilter (Baird Atomic, s. Tab. 1) für die zu untersuchende Wellenlänge (Abb. 3) und eine drehbare Polarisationsfolie. Die beiden Intensitäten  $I_{\parallel}$  und  $I_{\perp}$  wurden mit einem PSEV EMI 9558 QB gemessen.

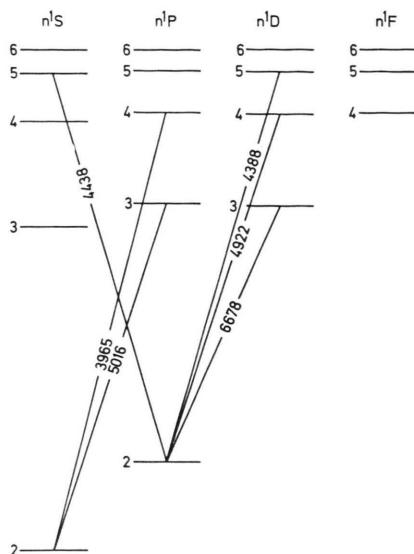


Abb. 3. Termschema einiger Helium-Singulett-Zustände mit den beobachteten Übergängen.

#### 2.5. Nachweiselektronik

Die den Intensitäten proportionalen PSEV-Ausgangssignale wurden nach einer vorherigen Verstärkung in einem Vielkanal (Intertechnique 400-Kanal-Analysator SA 40 B) zur Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses gespeichert. Die Kanalfortschaltung wurde von einem Zeitgenerator gesteuert. Um die effektive Meßzeit zu vergrößern, wurde bei jedem Durchlauf mehrfach in jeden Kanal gespeichert. Nach je 50 Magnetfelddurchläufen für  $I_{\parallel}(H)$  und  $I_{\perp}(H)$  wurde die Intensitätsdifferenz gebildet und ausgeschrieben. Die Konstanz der Gesamtintensität  $I_{\parallel}(H) + I_{\perp}(H)$  wurde in gleicher Weise geprüft.

Aus der Theorie des Hanle-Effektes ist bekannt und durch Messungen anderer bestätigt, daß bei der Untersuchung der  $nS_0$ -Zustände kein Resonanzsignal gemessen werden kann. Deshalb wurde die experimentelle Anordnung an Hand eines solchen Überganges ( $5^1S_0 - 2^1P_1$ ,  $\lambda = 4438 \text{ Å}$ ) überprüft. Bei dieser Überprüfung wurde den Voraussagen entsprechend kein Resonanzsignal festgestellt.

<sup>15</sup> W. SCHÖCK, Diplomarbeit, Universität Gießen 1968.

<sup>16</sup> J. C. PEBAY-PEYROULA et al., Excitation Electronique d'une Vapeur Atomique, Centre National de la Recherche Scientifique, Paris, 23. – 26. 5. 1966, S. 71.

<sup>17</sup> K. BUCHHAUPT u. W. DRTIL, Z. Naturforsch. **22a**, 2126 [1967] (die Ergebnisse sind bezüglich des Druckes korrigiert).

### 3. Ergebnisse und Diskussion

Bei jedem Heliumdruck wurden mehrere Lorentz-Kurven aufgenommen und die resultierenden Relaxationszeiten  $\tau^{(2)}$  gemittelt. Durch geeignete Wahl der Größe des Magnetfeldes  $H_1$  konnten die Lorentz-Kurven über ihr Maximum von  $-H_1$  bis  $H - H_1$  aufgezeichnet werden.

#### 3.1. Untersuchung der $3^1P$ - und $4^1P$ -Zustände

Der  $3^1P$ -Zustand wurde an Hand der Beobachtung des  $3^1P - 2^1S$ -Überganges ( $\lambda = 5016 \text{ Å}$ ) und der  $4^1P$ -Zustand an Hand der Beobachtung des  $4^1P - 2^1S$ -Überganges ( $\lambda = 3965 \text{ Å}$ ) untersucht. Abb. 4 zeigt eines der aufgezeichneten Resonanz-

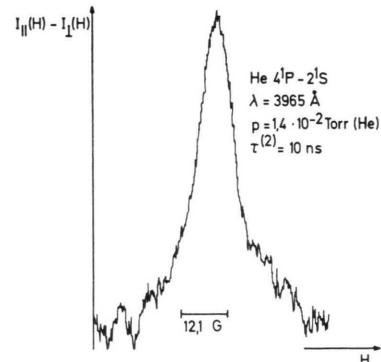


Abb. 4. Beobachtetes Hanle-Effekt-Resonanzsignal des durch  $\text{H}^+$ - und  $\text{H}_2^+$ -Ionenstoß angeregten He  $4^1P$ -Zustandes [Ordinate:  $I_{\parallel}(H) - I_{\perp}(H)$ ; Abszisse: Magnetfeld  $H$ ].

signale  $I_{\parallel}(H) - I_{\perp}(H)$  für den  $4^1P$ -Zustand bei einem Heliumdruck von  $p = 1.4 \cdot 10^{-2}$  Torr. In den folgenden Abb. 5 und 6 sind die Ergebnisse mit denen anderer Autoren<sup>15–18, 20</sup> und den errechneten natürlichen Lebensdauern<sup>19</sup>  $\tau$  verglichen. Die zu diesem Vergleich herangezogenen Ergebnisse aus Hanle-Effekt-Messungen des  $3^1P$ -Zustandes von PEBAY-PEYROULA<sup>16</sup> wurden aus veröffentlichten Lorentz-Kurven errechnet.

Entsprechend der Gl. (4) ergibt sich durch Extrapolation der Relaxationszeit  $\tau^{(2)}$  zum Druck  $p = 0$  Torr die natürliche Lebensdauer  $\tau$  des angeregten Zustandes. In Tab. 2 sind die so ermittelten natür-

<sup>18</sup> A. L. OSHEROVICH u. Y. F. VEROLAINEN, Opt. Spectr. USSR **24**, 81 [1968].

<sup>19</sup> A. H. GABRIEL u. D. W. O. HEDDLE, Proc. Roy. Soc. London **258 A**, 124 [1960].

<sup>20</sup> R. B. KAY u. R. HUGHES, Phys. Rev. **154**, 61 [1967].

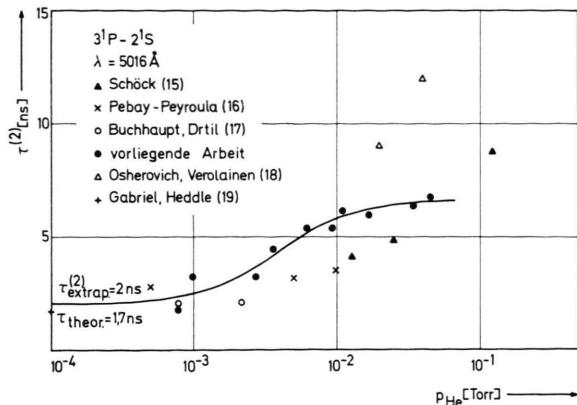


Abb. 5. Gemessene Druckabhängigkeit der Relaxationszeit  $\tau^{(2)}$  des durch  $H^+$ - und  $H_2^+$ -Ionenstoß angeregten He  $3^1P$ -Zustandes.

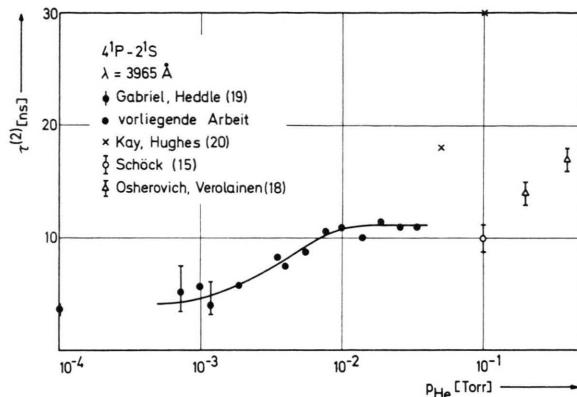


Abb. 6. Gemessene Druckabhängigkeit der Relaxationszeit  $\tau^{(2)}$  des durch  $H^+$ - und  $H_2^+$ -Ionenstoß angeregten He  $4^1P$ -Zustandes.

lichen Lebensdauern für die beiden untersuchten  $n^1P$ -Zustände den von GABRIEL und HEDDLE<sup>19</sup> angegebenen gegenübergestellt.

	$\tau$ (ns) theor. <sup>19</sup>	$\tau$ (ns) exp.
$3^1P$	1,71	$2 \pm 0,8$
$4^1P$	3,93	$4 \pm 0,6$

Tab. 2. Berechnete und experimentell bestimmte natürliche Lebensdauern der He  $3^1P$ - und  $4^1P$ -Zustände.

Die Druckabhängigkeit der Relaxationszeiten beider Zustände ist in dem untersuchten Druckbereich im wesentlichen durch die kohärente Vielfachstreuung der Quanten des Resonanzüberganges bestimmt. Eine Relaxationszeitverkürzung durch Stöße konnte bis zu einem Druck von  $p = 5 \cdot 10^{-2}$  Torr bei der erreichten Meßgenauigkeit noch nicht festgestellt werden. Das charakteristische Anwachsen der Relaxa-

tionszeit  $\tau^{(2)}$  mit steigendem Druck bis zu einem Maximalwert  $\tau^{(2)} = (10/3) \tau$  wird für den Fall des  $3^1P$ -Zustandes in Abb. 7 mit den Ergebnissen der theoretischen Untersuchungen von Barrat und D'Yakonov, Perel verglichen. Die beste Anpassung gelang für einen effektiven Radius der Stoßkammer von  $L = 0,7$  cm nach der Barratschen Theorie und für  $L = 0,9$  cm nach der von D'Yakonov und Perel.

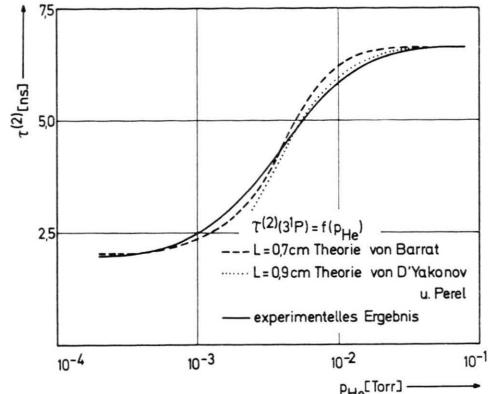


Abb. 7. Vergleich der experimentell bestimmten Druckabhängigkeit der Relaxationszeit  $\tau^{(2)}$  des He  $3^1P$ -Zustandes mit den Ergebnissen theoretischer Untersuchungen.

In beiden Fällen ist die Abweichung des zur Anpassung verwendeten effektiven Radius  $L = 0,7$  cm und  $L = 0,9$  cm von dem Radius der Stoßkammer  $R = 2$  cm größer als die Abweichung, die Barrat in einem Vergleich zwischen der Theorie und dem Experiment gefunden hat.

Außerdem sind die Abb. 5 und 6 durch Ergebnisse, die aus Messungen nach der Methode der verzögerten Koinzidenzen<sup>18, 20</sup> bei Elektronenstoßanregung gewonnen wurden, erweitert worden. In den meisten Fällen ist aber ein Vergleich mit den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit sowohl bezüglich der Absolutwerte als auch der Druckabhängigkeit nicht möglich.

### 3.2. Untersuchung der $3^1D$ -, $4^1D$ - und $5^1D$ -Zustände

Die Resonanzsignale der drei genannten  $n^1D$ -Zustände wurden in gleicher Weise wie die der  $n^1P$ -Zustände bei verschiedenen Heliumdrucken aufgezeichnet. An Hand der folgenden Übergänge wurden diese Zustände untersucht:

$3^1D - 2^1P$  ( $\lambda = 6678 \text{ \AA}$ ),  
 $4^1D - 2^1P$  ( $\lambda = 4922 \text{ \AA}$ )  
und  $5^1D - 2^1P$  ( $\lambda = 4388 \text{ \AA}$ ).

In den Abb. 8 und 9 ist einem Resonanzsignal des  $3^1\text{D}$ -Zustandes eines des  $4^1\text{D}$ -Zustandes gegenübergestellt. In den folgenden Abb. 10 – 12 sind die ermittelten Druckabhängigkeiten der Relaxationszeiten der  $n^1\text{D}$ -Zustände ( $n = 3, 4, 5$ ) angegeben.

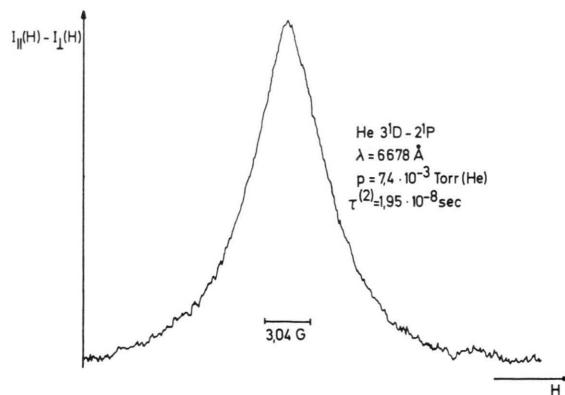


Abb. 8. Beobachtetes Hanle-Effekt-Resonanzsignal des durch  $\text{H}^+$ - und  $\text{H}_2^+$ -Ionenstoß angeregten He  $3^1\text{D}$ -Zustandes. [Ordinate:  $I_{\parallel}(H) - I_{\perp}(H)$ ; Abszisse: Magnetfeld  $H$ .]

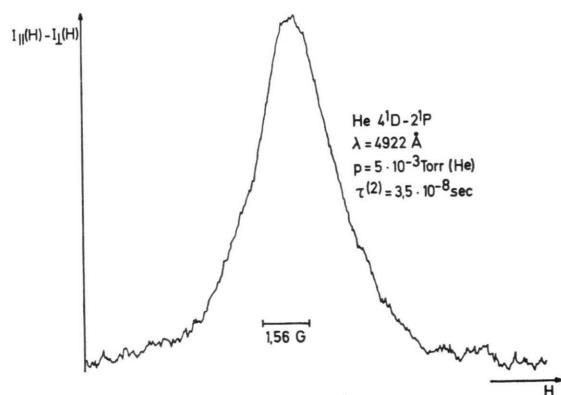


Abb. 9. Beobachtetes Hanle-Effekt-Resonanzsignal des durch  $\text{H}^+$ - und  $\text{H}_2^+$ -Ionenstoß angeregten He  $4^1\text{D}$ -Zustandes. [Ordinate:  $I_{\parallel}(H) - I_{\perp}(H)$ ; Abszisse: Magnetfeld  $H$ .]

In einigen Fällen sind die Fehlerbreiten der Messungen eingetragen. Außerdem sind zum Vergleich die Ergebnisse anderer experimenteller Untersuchungen sowie die errechneten natürlichen Lebensdauern herangezogen worden. Die Extrapolation zum Druck  $p=0$  Torr liefert die in Tab. 3 zusammengestellten Ergebnisse für die natürlichen Lebensdauern der  $n^1\text{D}$ -Zustände ( $n = 3, 4, 5$ ).

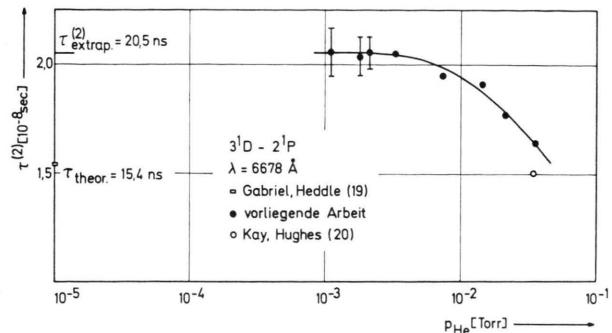


Abb. 10. Gemessene Druckabhängigkeit der Relaxationszeit  $\tau^{(2)}$  des durch  $\text{H}^+$ - und  $\text{H}_2^+$ -Ionenstoß angeregten He  $3^1\text{D}$ -Zustandes.

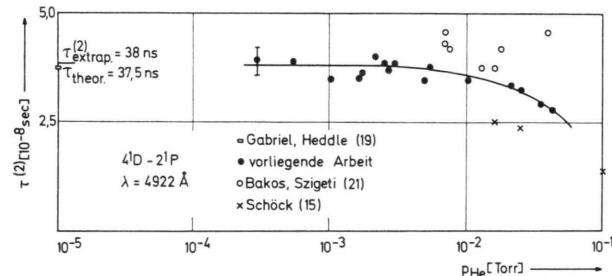


Abb. 11. Gemessene Druckabhängigkeit der Relaxationszeit  $\tau^{(2)}$  des durch  $\text{H}^+$ - und  $\text{H}_2^+$ -Ionenstoß angeregten He  $4^1\text{D}$ -Zustandes.

Es ist bemerkenswert, daß die natürliche Lebensdauer des  $3^1\text{D}$ -Zustandes, wie sie sich aus der Extrapolation ergibt, um ungefähr  $1/3$  größer als die

	$\tau$ (ns) theor. <sup>19</sup>	$\tau$ (ns) a) <sup>20</sup>	$\tau$ (ns) b) <sup>22</sup>	$\tau$ (ns) c) <sup>23</sup>	$\tau$ (ns) d) <sup>18</sup>	$\tau$ (ns) e) <sup>24</sup>
$3^1\text{D}$	15,4	$20,5 \pm 0,9$	$16,5 \pm 1$	$16,5 \pm 2$	$16 \pm 1$	
$4^1\text{D}$	37,8	$38,0 \pm 2$	$38,0 \pm 1$	$39,1 \pm 2$	$30 \pm 2$	$41 \pm 3$
$5^1\text{D}$	72,7	$68,0 \pm 7$		$49,1 \pm 2$	$46 \pm 3$	$60 \pm 6$

Tab. 3. Berechnete und experimentell bestimmte natürliche Lebensdauern der He  $3^1\text{D}$ -,  $4^1\text{D}$ - und  $5^1\text{D}$ -Zustände [a) Hanle-Effekt-Messungen der vorliegenden Arbeit; b) Hanle-Effekt-Messungen; c) Doppelresonanzexperimente; d), e) Methode der verzögerten Koinzidenzen].

<sup>21</sup> J. BAKOS u. J. SZIGETI, Acta Phys. Hung. **21**, 149 [1966].

<sup>22</sup> A. FAURE, O. NÉDÉLEC u. J.-C. PEBAY-PEYROULA, C. R. Acad. Sci. Paris **256**, 5088 [1963].

<sup>23</sup> B. DECOMPS, J.-C. PEBAY-PEYROULA u. J. BROSSEL, C. R. Acad. Sci. Paris **251**, 941 [1960].

<sup>24</sup> R. G. FOWLER, University of Oklahoma, private Mitteilung.

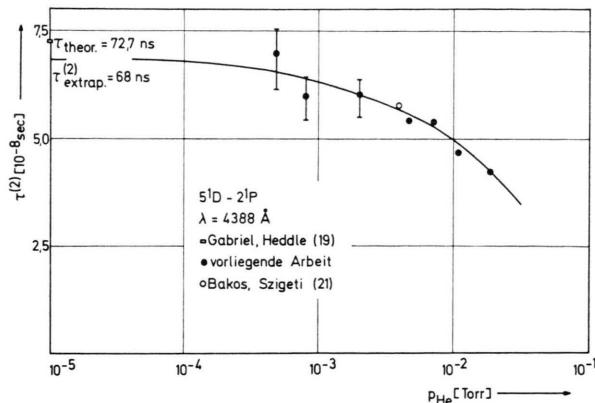


Abb. 12. Gemessene Druckabhängigkeit der Relaxationszeit  $\tau^{(2)}$  des durch  $H^+$ - und  $H_2^+$ -Ionenstoß angeregten He  $5^1D$ -Zustandes.

errechnete ist, während die natürlichen Lebensdauern der  $4^1D$ - und  $5^1D$ -Zustände nur geringfügig von den errechneten natürlichen Lebensdauern abweichen.

Aus der Gegenüberstellung der Resonanzsignale des  $3^1D$ - und  $4^1D$ -Zustandes (Abb. 8, 9) ist zu erkennen, daß das Resonanzsignal des  $3^1D$ -Zustandes eine von der Form der Lorentz-Kurve abweichende ausgeprägte Spitze besitzt. Es wurde deshalb der Versuch gemacht, diese Resonanzkurve als additive Überlagerung zweier Lorentz-Kurven zu deuten. Diese Anpassung ist in Abb. 13 dargestellt und wird wie folgt erklärt: Durch die Stoßanregung wird der zu untersuchende  $3^1D$ -Zustand zu einem hohen Prozentsatz direkt angeregt und zerfällt mit einer für ihn charakteristischen Relaxationszeit  $\tau^{(2)}$ . Außerdem wird dieser Zustand durch Kaskadenübergänge auch von höheren Zuständen aus besetzt.

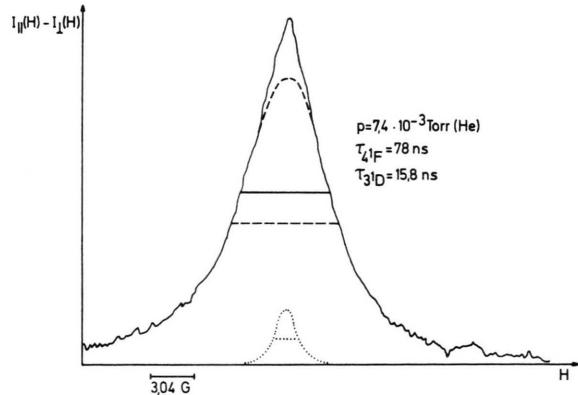


Abb. 13. Additive Überlagerung zweier Lorentz-Kurven zur Anpassung an das gemessene Hanle-Effekt-Resonanzsignal des He  $3^1D$ -Zustandes [Ordinate:  $I_{||}(H) - I_{\perp}(H)$ ; Abszisse: Magnetfeld  $H$ ].

Mit der Annahme, daß die Besetzung im wesentlichen durch einen Kaskadenübergang aus einem höheren Zustand erfolgt und die Relaxationszeit dieses Zustandes groß gegen die des zu untersuchenden Zustandes ist, wird die größere Relaxationszeit des höheren Zustandes wirksam. Für den vorliegenden Fall der Resonanzkurve des  $3^1D$ -Zustandes ergaben sich aus der Anpassung zwei Relaxationszeiten  $\tau_1^{(2)} = 15.8$  und  $\tau_2^{(2)} = 78$  ns, wobei die erste dem  $3^1D$ - und die zweite dem  $4^1F$ -Zustand zugeordnet wurde. Ein solcher Einfluß auf die natürlichen Lebensdauern der  $4^1D$ - und  $5^1D$ -Zustände war nicht erkennbar und läßt sich auf die geringeren Anregungswahrscheinlichkeiten der höheren Zustände zurückführen.

Während bei den Untersuchungen der Druckabhängigkeiten der  $n^1P$ -Zustände noch keine merklichen Verkürzungen der Relaxationszeiten durch Stöße festgestellt werden konnten, sind diese bei den Untersuchungen der  $n^1D$ -Zustände schon deutlich erkennbar. Da die  $n^1D$ -Zustände keine Resonanzzustände sind, entfällt der zweite Term in der Beschreibung durch die Gl. (4). Es ergibt sich eine lineare Druckabhängigkeit für die reziproke Relaxationszeit  $1/\tau^{(2)} = \bar{\sigma}^{(2)}$  der einzelnen  $n^1D$ -Zustände

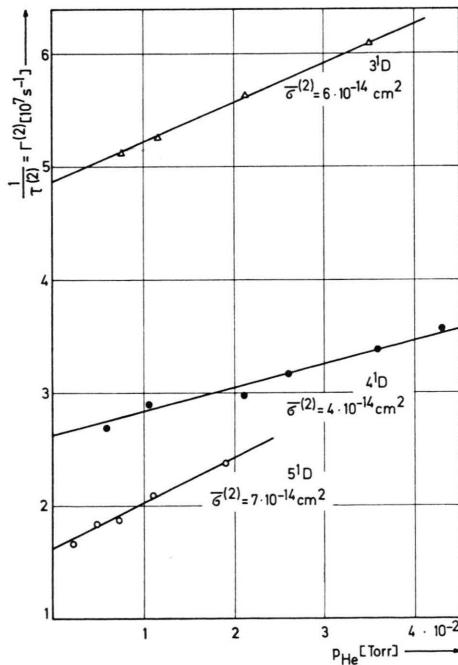


Abb. 14. Druckabhängigkeit der reziproken Relaxationszeiten  $1/\tau^{(2)} = \bar{\sigma}^{(2)}$  der He  $3^1D$ -,  $4^1D$ - und  $5^1D$ -Zustände im Druckbereich von  $1 \cdot 10^{-3}$  bis  $4 \cdot 10^{-2}$  Torr zur Bestimmung der mittleren Wirkungsquerschnitte für die Zerstörung der Ausrichtung (alignment).

(Abb. 14). Aus diesen Druckabhängigkeiten sind die in Tab. 4 angegebenen mittleren Wirkungsquerschnitte für die Zerstörung der Ausrichtung bestimmt worden.

	$\bar{\sigma}^{(2)}$ (cm <sup>2</sup> )	$\bar{\sigma}^{(2)}$ (cm <sup>2</sup> ) <sup>25</sup>	$\bar{\sigma}$ (cm <sup>2</sup> ) <sup>24</sup>
3 <sup>1</sup> D	$6 \cdot 10^{-14}$		
4 <sup>1</sup> D	$4 \cdot 10^{-14}$	$4 \cdot 10^{-14}$	
5 <sup>1</sup> D	$7 \cdot 10^{-14}$		
6 <sup>1</sup> D			$5,7 \cdot 10^{-14}$
7 <sup>1</sup> D			$8,5 \cdot 10^{-14}$

Tab. 4.

Diese Wirkungsquerschnitte sind verhältnismäßig groß, aber mit den für höhere  $n$  <sup>1</sup>D-Zustände bestimmten Wirkungsquerschnitten  $\bar{\sigma}$  für den „desexcitation“-Prozeß<sup>24</sup> angeregter Zustände durch Stöße mit anderen Atomen in der Größenordnung vergleichbar. Auch hier ist der oben diskutierte Einfluß des Kaskadenüberganges aus dem 4 <sup>1</sup>F-Zustand deutlich erkennbar. Der in Tab. 4 angegebene Wirkungsquerschnitt ist für den 3 <sup>1</sup>D-Zustand als Summe der Wirkungsquerschnitte des 3 <sup>1</sup>D- und 4 <sup>1</sup>F-Zustandes mit verschiedenen Gewichten anzusehen.

Dem Direktor des I. Physikalischen Institutes, Herrn Prof. Dr. W. HANLE, der mir diese Arbeit ermöglichte, möchte ich an dieser Stelle für seine stete Förderung danken. Meinem Kollegen Herrn Dipl.-Phys. K. BUCHHAUPT danke ich für seine Hilfe bei der Durchführung der Messungen.

<sup>25</sup> W. JANKE, Universität Gießen, private Mitteilung.

## Zufallswege und Reaktionen atomarer Gitterfehler in Modellkristallen

### I. Die Simulationsmethode und ihre Anwendung auf die Ausscheidung von Leerstellen \*

HELMUT MEHRER

Institut für Theoretische und Angewandte Physik der Universität Stuttgart  
und Institut für Physik am Max-Planck-Institut für Metallforschung, Stuttgart

(Z. Naturforsch. 24 a, 358—367 [1969]; eingegangen am 15. November 1968)

A Monte-Carlo method for the simulation of random walks and reactions of point defects in a lattice has been developed. It allows a physically more realistic treatment of point defect annealing than rate equations of diffusion theory. In this paper (I) the simulated annealing of monovacancies at an inexhaustible sink is compared with the results of the diffusion theory. Subsequently the method is applied to the precipitation of mono- and divacancies in an fcc lattice.

Überschüssige atomare Gitterfehler können aus einem Kristallgitter entweder durch gegenseitige Rekombination oder durch Annihilation an einer Senke verschwinden. In jedem Fall spielt für die physikalische Interpretation der zeitliche Verlauf der Reaktion, die sogen. Erholungskinetik, eine entscheidende Rolle. Üblicherweise<sup>1</sup> wird zu ihrer Deutung eine der beiden folgenden Näherungen herangezogen:

(i) *Ratengleichungen*, wie sie sich bei der Untersuchung der Kinetik von Gasreaktionen bewährt haben. Mit ihrer Hilfe ergibt sich beispielsweise für die Ausscheidung von Leerstellen an einer Senke mit unerschöpflicher Kapazität eine Reaktion erster Ordnung und für die Rekombination von Zwischengitteratomen und Leerstellen eine Reaktion zweiter

Ordnung. Die Anwendbarkeit von Ratengleichungen ist an eine ganze Reihe von Voraussetzungen geknüpft, deren Einfluß auf das Endergebnis schwer abzuschätzen ist. In die Ratengleichungen gehen nur räumliche Konzentrationsmittelwerte ein. Es wird also eine homogene Anfangsverteilung vorausgesetzt und es wird angenommen, daß die Verteilung während der Reaktion homogen bleibt. Eine Ortsabhängigkeit der Konzentrationen sowie eine Korrelation des Reaktionsgeschehens bleibt unberücksichtigt. Trotz solch einschneidender Vereinfachungen erhält man nur in wenigen Fällen geschlossene Lösungen.

(ii) Die *Diffusionstheorie* arbeitet mit ortsabhängigen Konzentrationen. HAM<sup>2</sup> untersucht mit Hilfe der Diffusionsgleichung die Ausscheidung aus einer übersättigten Lösung an Senken. FLYNN<sup>3</sup> diskutiert

\* Dissertation, Teil I, Universität Stuttgart 1968.

<sup>1</sup> A. C. DAMASK u. G. J. DIENES, Point Defects in Metals, Gordon & Breach Sci. Publ., Inc., New York 1963.

<sup>2</sup> F. S. HAM, J. Phys. Chem. Solids 6, 335 [1958].

<sup>3</sup> C. P. FLYNN, Phys. Rev. 133, A 587 [1964].