

Ein level-crossing-Experiment zur Untersuchung der Hyperfeinstruktur des angeregten $3^2P_{3/2}$ -Zustandes von ^{23}Na

M. BAUMANN

Physikalisches Institut der Universität Tübingen

(Z. Naturforsch. **21 a**, 1049—1057 [1969]; eingegangen am 5. April 1969)

The hyperfine structure of the $3^2P_{3/2}$ -state of ^{23}Na has been investigated by means of the level-crossing-technique. $\Delta m=2$ and $\Delta m=1$ crossing signals were detected by observing the field-dependence of the polarization of the fluorescence radiation in a magnetic field. From a detailed analysis of the experimental signal curves one obtains the magnetic hfs splitting constant $A=(18.8\pm 0.15)$ MHz, the electric quadrupole interaction constant $B=(2.9\pm 0.3)$ MHz and the lifetime of the excited $3^2P_{3/2}$ -state $\tau=(1.59\pm 0.04)\cdot 10^{-8}$ sec. The nuclear electric quadrupole moment deduced from the ratio B/A is $Q(^{23}\text{Na})=(0.124\pm 0.015)\cdot 10^{-24}$ cm² (without Sternheimer correction).

Wenn verschiedene Zeeman-Niveaus eines angeregten Atomzustandes bei einem bestimmten Wert des äußeren Magnetfeldes dieselbe Energie annehmen, so treten Interferenzeffekte in der Resonanzfluoreszenzstrahlung in Erscheinung, die eine Änderung der Winkelverteilung des gestreuten Lichtes bewirken. Ein Spezialfall dieses sogenannten level-crossing-Effektes, nämlich die magnetische Depolarisation der Fluoreszenzstrahlung in der Umgebung des Magnetfeldes Null, ist seit langem bekannt^{1,2} und wurde vielfach zur Bestimmung der Lebensdauer angeregter Zustände herangezogen. Auch die quantenmechanische Beschreibung des Effektes ist bereits in einer Arbeit von BREIT³ enthalten.

Das Interesse an diesen Erscheinungen wurde aber neu geweckt, nachdem im Jahre 1959 COLEGROVE et al.⁴ den level-crossing-Effekt bei von Null verschiedenem Feld als neue spektroskopische Methode zur Untersuchung angeregter Zustände benutzten und die Feinstruktur des 2^3P -Zustandes von Helium bestimmten. Ähnlich wie bei der optischen Doppelresonanzmethode⁵ ist dabei die erreichbare Auflösung im wesentlichen durch die Strahlungsbreite der untersuchten Terme bestimmt. In den letzten Jahren wurden level-crossing-Messungen in weitem Maße zur Untersuchung von Hyperfeinstrukturaufspaltungen durchgeführt, und zwar vorwie-

gend an solchen Atomzuständen, bei denen die von verschiedenen Termüberkreuzungen herrührenden Signale deutlich getrennt liegen. Dies ist der Fall, wenn die Hyperfeinstrukturaufspaltung groß gegen die Termbreite ist. Dann können die Magnetfeldwerte, bei denen die Termüberkreuzungen erfolgen, unmittelbar aus den Messungen mit hoher Genauigkeit festgelegt und daraus die Hyperfeinstruktur (künftig abgekürzt Hfs)-Kopplungskonstanten bestimmt werden. Die Auswertung eines level-crossing-Experimentes wird viel schwieriger, wenn die Hfs-Aufspaltung des angeregten Zustandes vergleichbar mit der durch die Lebensdauer der Terme bedingten Strahlungsbreite wird, weil sich dann die Signale der verschiedenen Termüberkreuzungen überlagern. Es muß dann eine genaue Analyse der Magnetfeldabhängigkeit des Resonanzlichtes durchgeführt werden, die im allgemeinen einen beträchtlichen Rechenaufwand erfordert. Derartige Verhältnisse liegen z. B. bei der Hfs des angeregten $3^2P_{3/2}$ -Terms des Natriumatoms vor. Im folgenden soll über ein level-crossing-Experiment an diesem Zustand berichtet werden.

Die Hfs des $3^2P_{3/2}$ -Terms von Na wurde mehrfach mit Hochfrequenzmethoden untersucht⁶⁻¹⁰. Auf Grund der ersten Messungen^{6,7} ergaben sich zwei mögliche Werte für das Quadrupolmoment des ^{23}Na -

Sonderdruckanforderungen erbeten an Dr. M. Baumann, Physikalisches Institut der Universität Tübingen, D-7400 Tübingen, Gmelinstr. 6.

¹ W. HANLE, Z. Phys. **30**, 93 [1924]; Ergebn. Exakt. Naturwiss. **4**, 214 [1925].

² A. C. G. MITCHELL u. M. W. ZEMANSKY, Resonance Radiation and Excited Atoms, University Press, Cambridge 1961.

³ G. BREIT, Rev. Mod. Phys. **5**, 91 [1933].

⁴ F. D. COLEGROVE, P. A. FRANKEN, R. R. LEWIS u. R. H. SANDS, Phys. Rev. Letters **3**, 420 [1959].

⁵ J. BROSEL u. F. BITTER, Phys. Rev. **86**, 308 [1952].

⁶ P. L. SAGALYN, Phys. Rev. **94**, 885 [1954].

⁷ M. L. PERL, I. I. RABI u. B. SENITZKY, Phys. Rev. **98**, 611 [1955].

⁸ J. N. DODD u. R. W. N. KINNEAR, Proc. Phys. Soc. London **75**, 51 [1960].

⁹ H. ACKERMANN, Z. Phys. **194**, 253 [1966].

¹⁰ M. BAUMANN, W. HARTMANN, H. KRÜGER u. A. OED, Z. Phys. **194**, 270 [1966].



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

Kerns; erst mit Hilfe der neueren Doppelresonanzmessungen⁸⁻¹⁰ konnte das elektrische Quadrupolmoment eindeutig festgelegt werden. Allerdings ist die Auswertung eines Doppelresonanzexperiments, bei dem die zu messende Hfs-Aufspaltung vergleichbar mit der Termbreite ist, nicht ohne Probleme: Man erhält dabei ein Hochfrequenzspektrum, das aus mehreren überlagerten Linien besteht. Diese können sich gegenseitig beeinflussen, was zu Linienverschiebungen führen kann^{11, 12}. Außerdem existiert bis jetzt keine Theorie, welche die genaue Linienform der Einzelsignale für diesen Fall angibt. Eine weitere Schwierigkeit liegt darin, daß bei einem Doppelresonanzexperiment an einem verhältnismäßig kurzlebigen Zustand ein starkes Hochfrequenz-Feld erzeugt werden muß; es besteht dann die Gefahr, daß leichte Gasentladungserscheinungen das Signal verfälschen¹⁰. Aus all diesen Gründen ist zu erwarten, daß bei schwach aufgelöster Hfs ein level-crossing-Experiment bei entsprechend aufwendiger Auswertung eine höhere Meßgenauigkeit als die Doppelresonanzmethode ermöglicht.

Eine level-crossing-Untersuchung am $3^2P_{3/2}$ -Term von Na wurde schon früher von MARKOVA und CHAIKA¹³ ausgeführt; jedoch konnten diese Autoren keine Aussagen über die Hfs-Kopplungskonstanten aus ihren Messungen gewinnen. In einigen theoretischen Arbeiten^{14, 15} wurde versucht, die Meßkurve von Markova und Chaika auszuwerten. Da aber auch hier keine exakte Analyse der Signalform in Abhängigkeit vom Magnetfeld vorgenommen wurde, konnte lediglich gezeigt werden, daß die aus den bis dahin bekannten Hfs-Kopplungskonstanten berechnete Lage der Termüberkreuzungen ungefähr mit dem Experiment übereinstimmte. Kurz nach dem Erscheinen einer Notiz über die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit¹⁶ wurden von verschiedenen Seiten entsprechende Messungen am $3^2P_{3/2}$ -Term des Natriums veröffentlicht¹⁷⁻¹⁹, bei denen unsere Resultate bestätigt wurden.

I. Theoretische Übersicht

Der Verlauf der Hfs-Zeeman-Niveaus eines Feinstrukturterms in Abhängigkeit vom äußeren Magnetfeld \mathbf{H} wird durch folgenden Hamilton-Operator bestimmt:

$$\mathcal{H} = A \cdot \mathbf{I} \cdot \mathbf{J} + \frac{B}{2I(2I-1)J(2J-1)} \cdot (3(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J})^2 + \frac{3}{2}(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J}) - \mathbf{I}^2 \mathbf{J}^2) + \mu_B g_J \mathbf{H} \cdot \mathbf{J} - \mu_B g_I \mathbf{H} \cdot \mathbf{I}. \quad (1)$$

Hierin bedeuten \mathbf{I} und \mathbf{J} die Drehimpulsoperatoren des Kerns bzw. der Elektronenhülle, A den magneti-

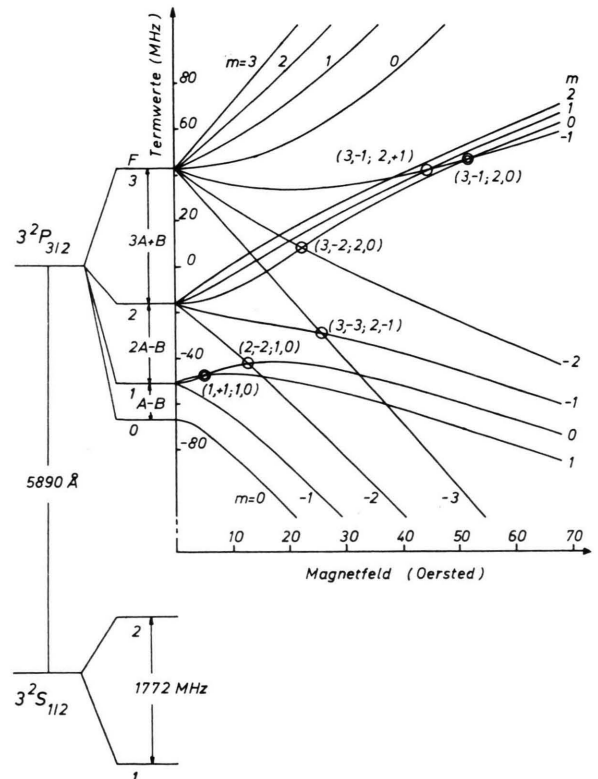


Abb. 1. Hyperfeinstrukturaufspaltung des $3^2P_{3/2}$ -Zustandes von ^{23}Na in Abhängigkeit vom Magnetfeld: $A=18,8$ MHz; $B=2,9$ MHz; $g_J=1,3344$. Die Termkreuzungspunkte $\Delta m=2$ und $\Delta m=1$ sind durch einfache bzw. doppelte Kreise markiert.

¹¹ F. BLOCH u. A. SIEGERT, Phys. Rev. **57**, 522 [1940].

¹² A. FAIST, E. GENEUX u. S. KOIDE, J. Phys. Soc. Japan **19**, 2299 [1965].

¹³ G. V. MARKOVA u. M. P. CHAIKA, Opt. i Spektroskopiya **17**, 319 [1964] (Engl. Übersetzung: Opt. Spectr. USSR **17**, 170 [1964]).

¹⁴ J. KAPELEWSKI u. K. ROSIŃSKI, Bull. Acad. Polon. Sci. **13**, 61 [1965].

¹⁵ J. KAPELEWSKI u. K. ROSIŃSKI, Acta Phys. Polon. **28**, 177 [1965].

¹⁶ M. BAUMANN, Z. Naturforsch. **23 a**, 620 [1968].

¹⁷ R. W. SCHMIEDER, A. LURIO u. W. HAPPER, Abstract presented to the Intern. Conf. on Atomic Physics, June 1968, New York.

¹⁸ G. COPLEY, B. P. KIBBLE u. G. W. SERIES, J. Phys. B (Proc. Phys. Soc.) **1**, 724 [1968].

¹⁹ D. SCHÖNBERNER u. D. ZIMMERMANN, Z. Phys. **216**, 172 [1968].

schen Hfs-Aufspaltungsfaktor, B die elektrische Quadrupolkopplungskonstante. g_J und g_I' sind die g -Faktoren von Hülle bzw. Kern und μ_B ist das Bohrsche Magneton.

In Abb. 1 ist der Termverlauf für den $3^2P_{3/2}$ -Zustand des ^{23}Na -Atoms ($I=3/2$) dargestellt, wie er sich aus der Diagonalisierung von \mathcal{H} in Abhängigkeit von \mathbf{H} ergibt. Man erkennt in dem Feldbereich, in dem \mathbf{I} und \mathbf{J} zunehmend entkoppelt werden, eine Reihe von Überkreuzungen verschiedener Zeeman-Niveaus. Die Kreuzungspunkte von Niveaus, deren magnetische Quantenzahlen m und m' sich um $\Delta m = 2$ bzw. $\Delta m = 1$ unterscheiden, sind durch Kreise markiert und mit der Bezeichnung $(F, m; F', m')$ eingetragen. (Dabei ist F die Gesamtdrehimpulsquantenzahl ohne äußeres Magnetfeld.) Es sind dies gerade die Überkreuzungen, die bei der Resonanzstreuung von Licht zu den level-crossing-Signalen führen.

Die Abhängigkeit der Resonanzfluoreszenzintensität vom Magnetfeld wird durch die BREITSche Formel^{3, 20, 21} beschrieben. Diese läßt sich besonders übersichtlich darstellen, wenn man die Dichtematrix des angeregten Zustandes verwendet^{22, 23}: Die Intensität der Fluoreszenzstrahlung mit einem bestimmten Polarisationszustand \mathbf{e}_λ ist gegeben durch

$$L_{\text{FI}}(\mathbf{e}_\lambda) \sim \sum_{m, m'} A_{mm'} \sigma_{m'm}. \quad (2)$$

Dabei ist

$$A_{mm'} = \sum_{\mu} \langle m | \mathbf{e}_\lambda \mathbf{D} | \mu \rangle \langle \mu | \mathbf{e}_\lambda \mathbf{D} | m' \rangle \quad (3)$$

eine Summe über die Produkte von Matrixelementen für elektrische Dipolstrahlung zwischen den Eigenzuständen $|m\rangle$ und $|\mu\rangle$ des angeregten bzw. Grundzustandes. $\sigma_{m'm}$ ist ein Element der Dichtematrix für das System der angeregten Atome im stationären Zustand:

$$\sigma_{m'm} \sim \sum_{\mu} \frac{\langle m' | \mathbf{e}_{\lambda_0} \mathbf{D} | \mu \rangle \langle \mu | \mathbf{e}_{\lambda_0} \mathbf{D} | m \rangle}{\Gamma + i(E_{m'} - E_m)}. \quad (4)$$

Hier bedeutet \mathbf{e}_{λ_0} den Polarisationsvektor des anregenden Lichtes; $\Gamma = \hbar/\tau$ ist die Strahlungsbreite des angeregten Zustandes, τ seine mittlere Lebensdauer; $E_{m'} - E_m$ gibt die Energiedifferenz der Terme m' und m im angeregten Zustand an. In (4) ist angenommen, daß die Dichtematrix des atomaren Grundzustandes $\sigma_{\mu\mu'}$ proportional zur Einheitsmatrix ist; die Zeeman-Niveaus des Grundzustandes sollen also stets gleichbesetzt sein.

Eine Änderung der Fluoreszenzlichtintensität $L_{\text{FI}}(\mathbf{e}_\lambda)$ in Abhängigkeit vom Magnetfeld ergibt sich zunächst dadurch, daß sich die Matrixelemente $\langle m | \mathbf{e}_\lambda \mathbf{D} | \mu \rangle$ bzw. $\langle m | \mathbf{e}_{\lambda_0} \mathbf{D} | \mu \rangle$ durch die zunehmende Entkopplung von Kernspin \mathbf{I} und Hüllendrehimpuls \mathbf{J} beim Übergang vom Zeeman- zum Paschen-Back-Effekt verändern, weil die Nullfeld-Eigenzustände $|F, m\rangle$ mit gleicher Magnetquantenzahl m immer mehr vermischt werden. Außerdem kann eine Änderung von $L_{\text{FI}}(\mathbf{e}_\lambda)$ dadurch zustande kommen, daß die Energiedifferenz $E_{m'} - E_m$ zwischen 2 Zuständen $m' \neq m$ vergleichbar mit der Strahlungsbreite Γ und schließlich bei einer Überkreuzung der beiden Terme gleich Null wird, wobei der Nenner von Gl. (4) ein Minimum durchläuft. Dann ist das Nichtdiagonalelement $\sigma_{m'm}$ ($m' \neq m$) in der Dichtematrix des angeregten Zustandes von der gleichen Größenordnung wie die Diagonalelemente: Die angeregten Atome befinden sich in einem Zustand, der einer kohärenten Überlagerung der Zeeman-Zustände $|m\rangle$ und $|m'\rangle$ entspricht. Entsprechend enthält das beobachtete Fluoreszenzlicht einen kohärenten Anteil, der wegen des Resonanznenners in Gl. (4) eine starke Feldabhängigkeit zeigt. Dies führt zu den sogenannten level-crossing-Signalen.

Voraussetzung zur Beobachtung eines solchen Signals ist, daß sowohl bei der Anregung wie bei der Beobachtung der Fluoreszenzstrahlung die Polarisationsvektoren \mathbf{e}_{λ_0} bzw. \mathbf{e}_λ so gewählt sind, daß die Matrixelemente im Zähler von (4) wie auch von $A_{mm'}$ von Null verschieden sind. Die Auswahlregeln für elektrische Dipolstrahlung ($m = \mu, \mu \pm 1$) bedingen, daß nur level-crossing-Signale mit $|m - m'| \leq 2$ auftreten können. Weiterhin muß bei der Anregung und beim Nachweis der Fluoreszenzstrahlung mit einer kohärenten Überlagerung von σ^+ , σ^- oder π -Licht gearbeitet werden, um ein level-crossing-Signal feststellen zu können, und zwar erfordert ein $\Delta m = 2$ -crossing eine kohärente Überlagerung von σ^+ - und σ^- -Strahlung, während ein $\Delta m = 1$ -crossing nur beobachtet werden kann, wenn π - und σ -Licht kohärent überlagert ist. Die Form der level-crossing-Signale hängt von Richtung und Polarisation des anregenden und des gestreuten Lichtes ab. Man kann zeigen²⁰, daß sich ein isoliert liegendes crossing-Signal immer als Überlagerung einer Lorentz-Kurve und einer Dispersionskurve darstellen läßt, solange die

²⁰ P. A. FRANKEN, Phys. Rev. **121**, 508 [1961].

²¹ M. E. ROSE u. R. L. CAROVILLANO, Phys. Rev. **122**, 1185 [1961].

²² J. P. BARRAT u. C. COHEN-TANNOUDJI, J. Phys. Radium **22**, 329, 443 [1961].

²³ C. COHEN-TANNOUDJI, Ann. Phys. Paris **7**, 423 [1962].

Energiedifferenz $E_{m'} - E_m$ linear vom Magnetfeld abhängt und die Matrixelemente sich über den Signalbereich nicht merklich ändern. Durch Wahl einer geeigneten Geometrie kann man die Lorentz-Kurve bzw. die Dispersionskurve rein erhalten. Im Fall des $3^2P_{3/2}$ -Zustandes von Na, wo die Hfs-Aufspaltung vergleichbar mit der Termbreite ist, sind Abweichungen von den genannten Kurvenformen zu erwarten, da sich innerhalb der Linienbreite des crossing-Signals die Matrixelemente verändern und außerdem die Energiedifferenz $E_{m'} - E_m$ in der Umgebung des Überkreuzungspunktes im allgemeinen keine lineare Funktion des Magnetfeldes ist.

Eine wichtige Voraussetzung für die Gültigkeit von Gl. (4) ist die Konstanz der spektralen Intensität des anregenden Lichtes über den ganzen Frequenzbereich der Hfs-Komponenten der Resonanzlinie. Diese Voraussetzung ist bei Verwendung einer Na-Spektrallampe als Lichtquelle nicht erfüllt, weil die Hfs-Aufspaltung des $3^2S_{1/2}$ -Grundzustandes von 1772 MHz schon vergleichbar mit der Doppler-Breite (ca. 2,1 GHz bei 500 °C) in der Lichtquelle ist. Das Linienprofil des eingestrahnten Lichtes muß daher berücksichtigt werden: Die mittlere Intensität \bar{L}_{Fl} der Resonanzfluoreszenzstrahlung bei einer spektralen Intensitätsverteilung $I(\omega)$ des anregenden Lichtes und Einstrahlung in y -Richtung ist durch folgenden Ausdruck gegeben²⁴:

$$\bar{L}_{\text{Fl}} \sim \int_0^\infty I'(\omega) \cdot L_{\text{Fl}}(\omega) d\omega. \quad (5)$$

Dabei ist

$$I'(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} n(v_y) \cdot I\left(\omega - \frac{v_y}{c} \omega\right) dv_y$$

die tatsächliche Intensitätsverteilung, mit der die bewegten Atome angeregt werden. $n(v_y)$ ist die Verteilungsfunktion für die Geschwindigkeitskomponenten v_y der streuenden Atome. $L_{\text{Fl}}(\omega)$ ist der Beitrag zur Fluoreszenzlichtintensität, der von einem Atom herkommt, das durch monochromatische Strahlung mit der Kreisfrequenz ω angeregt wurde. $L_{\text{Fl}}(\omega)$ kann im Anschluß an FRANKEN²⁰ berechnet werden. Die Berechnung der Intensität \bar{L}_{Fl} nach Gl. (5) würde allerdings für ein beliebig vorgegebenes Lampenprofil $I(\omega)$ einen großen Rechenaufwand erforderlich machen. Ein Spezialfall wurde von GALLAGHER und LURIO²⁴ behandelt: Wenn die verschiedenen Hfs-Komponenten in der anregenden Strahlung jeweils eine Gaußsche Intensitätsverteilung aufweisen,

so kann man für jede „Lampenlinie“ einzeln nach Gl. (5) den Beitrag zum gesamten Fluoreszenzlicht berechnen. Dies ist in geschlossener Form möglich und führt zu dem Ergebnis, daß eine Lampenlinie mit Gauß-Profil dieselben level-crossing-Signale ergibt, wie die Anregung mit weißem Licht, sofern die Linienbreite des Gauß-Profiles groß gegenüber den Energiedifferenzen $E_{m'} - E_m$ ist. Man muß dann lediglich die Beiträge der einzelnen Lampenlinien mit der relativen Intensität der Linien bewichten und über alle Linien summieren, um die gesamte Fluoreszenzlichtintensität \bar{L}_{Fl} zu erhalten.

In unserem Fall enthält das anregende Licht zwei überlagerte Komponentengruppen, deren Mitten um den Hfs-Abstand des Na-Grundzustandes gegeneinander verschoben sind. Dieses Profil wird noch wesentlich durch Selbstabsorption beeinflusst. Deshalb wird die obige Betrachtung, die für Gauß-Profile gilt, sicher nur näherungsweise richtig sein. Der Einfluß des Lampenprofils auf die Messungen konnte aber von vornherein dadurch beträchtlich herabgesetzt werden, daß durch ein geeignetes Modulationsverfahren nur die kohärent gestreuten Anteile des Fluoreszenzlichtes [Glieder mit $m \neq m'$ in Gl. (2)] nachgewiesen wurden (s. u.). Deshalb genügte es, die Intensitätsverteilung der anregenden Strahlung genähert zu berücksichtigen, indem das Verfahren von²⁴ auf den vorliegenden Fall übertragen wurde: Ein Element $\sigma_{m'm}$ der Dichtematrix des angeregten Zustandes ist dann nach folgender Beziehung zu berechnen [statt nach Gl. (4)]:

$$\sigma_{m'm} \sim \sum_{q,\mu} \frac{\langle m' | \mathbf{e}_{\lambda_0} \mathbf{D} | \varphi, \mu \rangle I_q \langle \varphi, \mu | \mathbf{e}_{\lambda_0} \mathbf{D} | m \rangle}{\Gamma + i(E_{m'} - E_m)}. \quad (6)$$

Hierin kennzeichnet I_q die relative Intensität der Strahlung, die vom Hfs-Term φ des Grundzustandes absorbiert werden kann. Unter Verwendung der Beziehung (6) können nach (2) die theoretischen Signalkurven berechnet werden.

Die Rechnungen wurden auf dem Elektronenrechner CDC 3200 des Tübinger Rechenzentrums ausgeführt. Das Rechenprogramm war so angelegt, daß bei jedem Wert des Magnetfeldes zunächst der Hamilton-Operator (1) diagonalisiert wurde, um die Energieeigenwerte und die zugehörigen Eigenfunktionen $|m\rangle$ des angeregten Zustandes zu erhalten. Dabei waren die Nullfeldeigenfunktionen $|F, m_F\rangle$ als Basis gewählt. Für die so erhaltenen Eigenzustände wurden die Matrixelemente in der BREITSchen

²⁴ A. GALLAGHER u. A. LURIO, Phys. Rev. **136** A, 87 [1964].

Formel (2) ermittelt. (In dem betrachteten Magnetfeldbereich von 0–70 Oe ist die Vermischung der Zeeman-Zustände $|\mu\rangle$ des Grundzustandes noch zu vernachlässigen.) Nach (2) wurden sodann für die jeweils vorgegebenen Geometrie- und Polarisationsverhältnisse die $\Delta m=2$ - und $\Delta m=1$ -level-crossing-Signale in Abhängigkeit vom Magnetfeld berechnet. Die Ermittlung einer Signalkurve benötigte ca. 20 Minuten Rechenzeit. Als Parameter gehen in das Rechenprogramm folgende Größen ein: Die Hfs-Kopplungskonstanten A und B , die Strahlungsbreite $\Gamma = \hbar/\tau$, die g -Faktoren g_J und g_I' , sowie das Verhältnis der Anregungsintensitäten $r = I_1/I_2$ für die beiden Hfs-Terme $\varphi=1$ und $\varphi=2$ des Grundzustandes. Durch Variation der Parameter A , B , τ und r konnten die theoretischen Kurven an die Messungen angepaßt werden (s. Abschn. III). Bei der Rechnung wurden die Werte

$$g_J(3^2P_{3/2}) = 1,3344(4)^9 \quad \text{und} \quad g_I' = 0,00080^{25}$$

benützt. Die direkte Wechselwirkung des magnetischen Kernmomentes mit dem äußeren Feld ist allerdings im betrachteten Feldbereich vernachlässigbar klein.

II. Experimentelle Durchführung

Als *Lichtquelle* zur Erzeugung der Na-Resonanzlinien wurde eine elektrodenlose HF-Entladung verwendet: Ein abgezogenes, kugelförmiges Gefäß (Φ 25 mm) aus Na-festem Überfangglas (Osram Type 612 V 6/905 C), das einen Tropfen metallisches Natrium sowie 3 Torr Neon als Trägergas enthielt, befand sich in einem Resonator (Topfkreis), der mit einem VALVO-Magnetron 7090 bei einer Frequenz von 2,5 GHz erregt wurde. Bei einer im Resonator verbrauchten HF-Leistung von etwa 30 W brannte in dem Gefäß eine sehr intensive und stabile Gasentladung. Eine zusätzliche Heizung des Entladungsgefäßes war unnötig; es wurde lediglich mit Hilfe einiger quergespannter Heizdrähte eine Wärmelufschicht vor der Lichtaustrittsöffnung des Resonators erzeugt, um ein Beschlagen des Gefäßes zu verhindern.

Das *Resonanzgefäß* hatte die Gestalt eines Woodschen Horns und war aus Gerätéglass N 20 hergestellt. Es wurde längere Zeit ausgeheizt und nach dem Eindestillieren des Na-Metalls vom Pumpstand abgezogen. Das fertige Resonanzgefäß wurde in einem Messingofen untergebracht und mit einem Umlaufthermostaten auf die jeweilige Arbeitstemperatur aufgeheizt. Die Messungen erfolgten bei einer Temperatur von 130 °C, entsprechend einem Na-Dampfdruck von ca. $1 \cdot 10^{-6}$ Torr²⁶.

Bei diesem Druck hat die Strahlungsdiffusion noch keinen merklichen Einfluß auf die Signale^{9, 27}. Der Ofen mit dem Resonanzgefäß befand sich im *Magnetfeld*, das durch ein Helmholtz-Spulenpaar mit einem mittleren Durchmesser von 30 cm erzeugt wurde. Die Feld-eichung geschah mit Hilfe der Elektronenresonanz von DPPH. Durch 3 weitere Helmholtz-Spulenpaare (ca. 50 cm Φ) konnte das Erdfeld am Ort des Resonanzgefäßes in allen Richtungen auf < 10 mOe kompensiert werden. Wechselstrefelder (z. B. vom Thermostatmotor) waren stets < 20 mOe. Diese geringen Restfelder störten die Messungen nicht.

Das anregende Licht wurde senkrecht zur Magnetfeldrichtung eingestrahlt; das Fluoreszenzlicht wurde bei der Vermessung der $\Delta m=2$ -crossing-Signale in Richtung des Magnetfeldes, beim Nachweis der $\Delta m=1$ -Signale senkrecht zum Feld und zur Einstrahlrichtung mittels zweier Multiplier (RCA 1P 21 bzw. EMI 6094) beobachtet. Im Anregungs- und Beobachtungsstrahlengang befanden sich ein geeigneter Polarisator bzw. ein Analysator, die beide aus Polaroidfolien hergestellt waren. Um eine direkte Beeinflussung der Multiplier durch das Magnetfeld zu vermeiden, waren diese mit μ -Metall abgeschirmt und in ca. 100 cm Abstand vom Feld angebracht. Das Fluoreszenzlicht wurde ihnen durch Plexiglas-Lichtleiter zugeführt. Es war nicht nötig, die D_1 - und D_2 -Linie zu trennen, da die D_1 -Linie ($3^2S_{1/2} - 3^2P_{1/2}$) keinen Beitrag zum Signal liefert: Bei Anregung mit linear polarisiertem Licht ist das vom $^2P_{1/2}$ -Zustand ausgehende Fluoreszenzlicht stets unpolarisiert, unabhängig vom äußeren Magnetfeld²⁸, solange keine LS-Entkopplung eintritt. Diese Aussage ließ sich überprüfen, indem bei einem Vorversuch die beiden D-Linien mit einem Lyot-Filter getrennt wurden; mit der D_1 -Linie war kein feldabhängiges Signal zu finden, während die D_2 -Linie allein die sonstigen level-crossing-Signale lieferte. Bei den Messungen wurde jeweils ein Modulationsverfahren angewandt, um nur die „kohärenten“ Anteile des Fluoreszenzlichtes zu erfassen.

Beobachtung der $\Delta m=2$ -Signale: Abb. 2 zeigt das Schema der Versuchsanordnung: Das anregende Licht war linear polarisiert mit dem **E**-Vektor senkrecht zum Magnetfeld **H** (kohärente Überlagerung von σ^+ - und σ^- -Strahlung); das Fluoreszenzlicht wurde in Feldrichtung durch einen rotierenden Analysator (16 Umdr./sec) beobachtet. Auf diese Weise wurde die Intensität des linear polarisierten kohärenten Anteils am Fluoreszenzlicht mit der doppelten Drehfrequenz des Analysators moduliert, während die inkohärent gestreute σ^+ - und σ^- -Strahlung keinen Beitrag zum Modulationssignal lieferte. Man kann den Anteil am Fluoreszenzlicht, der durch die ko-

²⁵ O. LUTZ, Z. Naturforsch. **23 a**, 1202 [1968].

²⁶ D'ANS-LAX, Taschenbuch für Chemiker und Physiker, Bd. I, S. 903; Springer-Verlag, Berlin 1967.

²⁷ A. OED, Diplomarbeit, Tübingen 1963.

²⁸ A. ELLETT u. N. P. HEYDENBURG, Phys. Rev. **46**, 583 [1934].

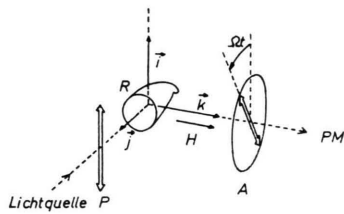


Abb. 2. Schematische Darstellung der Versuchsanordnung zur Beobachtung der $\Delta m=2$ -level-crossing-Signale. P Polarisator, A rotierender Analysator, R Resonanzgefäß, H Magnetfeld, PM Photomultiplier.

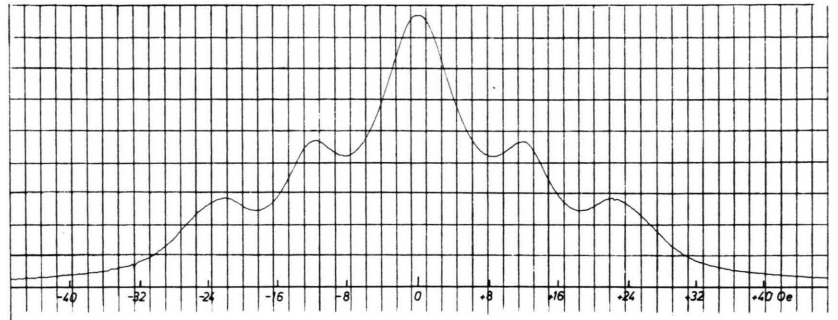


Abb. 3. Registrierung der $\Delta m=2$ -level-crossing-Signale bei einer Nachweiszeitkonstante von 1 sec.

härente Streuung an zwei beliebigen Niveaus m und m' mit $m - m' = 2$ zustande kommt, nach (2) berechnen. Es ist

$$L_{mm'}^{\Delta m=2} \sim A_{mm'} \sigma_{m'm} + A_{m'm} \sigma_{mm'}.$$

Mit den Matrixelementen für elektrische Dipolstrahlung²⁹ und den Polarisationsvektoren $\mathbf{e}_{i_0} = \mathbf{i}$ und $\mathbf{e}_\lambda = \mathbf{i} \cos \Omega t + \mathbf{j} \sin \Omega t$ ergibt sich:

$$L_{mm'}^{\Delta m=2} \sim \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + (E_m - E_{m'})^2} \cos 2 \Omega t + \frac{\Gamma(E_m - E_{m'})}{\Gamma^2 + (E_m - E_{m'})^2} \sin 2 \Omega t.$$

Ein $\Delta m=1$ -Signal tritt bei dieser Geometrie nicht auf, so daß sich der Modulationsanteil der Fluoreszenzstrahlung allein aus der Summe der verschiedenen $\Delta m=2$ -crossing-Signale zusammensetzt. Das Wechselspannungssignal am Ausgang des Multipliers wurde mit einem Lock-in-Detektor (PAR HR 8) nachgewiesen und auf einem Schreiber registriert. Die Phase war so gewählt, daß der mit $\cos 2 \Omega t$ zeitveränderliche Anteil gemessen wurde. In Abb. 3 ist

eine so erhaltene Registrierkurve dargestellt, die Nachweiszeitkonstante betrug eine Sekunde.

Beobachtung der $\Delta m=1$ -Signale: In Abb. 4 ist die Versuchsanordnung schematisch dargestellt: Das anregende Licht wurde durch einen rotierenden Polarisator eingestrahlt und das Fluoreszenzlicht senkrecht zum Feld durch einen Analysator beobachtet, der um den Winkel Θ gegen die Feldrichtung (\mathbf{k} -Achse) geneigt war. Die mit einem Lock-in-Detektor nachweisbaren Modulationsanteile im Fluoreszenzlicht enthalten im allgemeinen sowohl kohärente $\Delta m=1$ - und $\Delta m=2$ -Beiträge als auch inkohärent gestreutes Licht, allerdings jeweils mit verschiedener Phasenlage. Mit den Polarisationsvektoren

$$\mathbf{e}_{i_0} = \mathbf{i} \cos \Omega t - \mathbf{k} \sin \Omega t$$

und

$$\mathbf{e}_\lambda = \mathbf{k} \cos \Theta - \mathbf{j} \sin \Theta$$

erhält man für den Anteil, der durch kohärente Streuung an zwei beliebigen Niveaus m und m' mit $m - m' = 1$ entsteht:

$$L_{mm'}^{\Delta m=1} \sim \frac{\Gamma(E_m - E_{m'})}{\Gamma^2 + (E_m - E_{m'})^2} \sin 2 \Theta \cdot \sin 2 \Omega t.$$

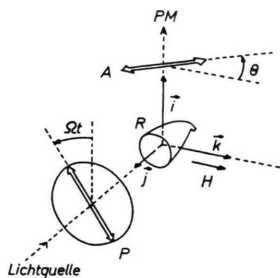


Abb. 4. Schematische Darstellung der Versuchsanordnung zur Beobachtung der $\Delta m=1$ -level-crossing-Signale. P rotierender Polarisator, A Analysator, R Resonanzgefäß, H Magnetfeld, PM Photomultiplier.

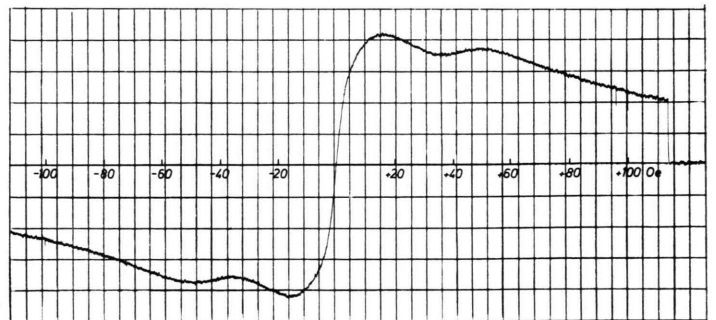


Abb. 5. Registrierung der $\Delta m=1$ -level-crossing-Signale bei einer Nachweiszeitkonstante von 1 sec.

²⁹ E. U. CONDON u. G. H. SHORTLEY, The Theory of Atomic Spectra, Cambridge, University Press, 1963.

Für einen kohärenten Fluoreszenzlichtanteil mit $\Delta m = 2$ findet man bei dieser Geometrie:

$$L_{mm'}^{\Delta m=2} \sim \frac{I^2}{I^2 + (E_m - E_{m'})^2} \sin^2 \Theta \cdot \{1 + \cos 2 \Omega t\}$$

und für die modulierten Anteile des inkohärent gestreuten Lichtes ergibt sich ebenfalls eine Zeitveränderlichkeit mit $\cos 2 \Omega t$. Durch geeigneten Phasenabgleich am Lock-in-Detektor kann man erreichen, daß nur das zu $\sin 2 \Omega t$ proportionale $\Delta m = 1$ -crossing-Signal nachgewiesen wird, ohne Beeinflussung durch die $\Delta m = 2$ -crossings oder das inkohärent gestreute Licht. (Man mißt dann praktisch die Signaldifferenz zwischen den beiden Polarisationsrichtungen $\mathbf{i} + \mathbf{k}$ und $\mathbf{i} - \mathbf{k}$ des anregenden Lichtes.) Abb. 5 zeigt eine Schreiberkurve der $\Delta m = 1$ -Signale bei einer Nachweiszeitkonstante von 1 sec. Bei den Messungen war $\Theta = 45^\circ$, um die maximalen $\Delta m = 1$ -Signale zu erhalten.

III. Auswertung und Ergebnisse

Bei der Anpassung der theoretisch berechneten Signalkurven an die experimentellen Ergebnisse wurden die Hfs-Kopplungskonstanten A und B , sowie die Lebensdauer τ und das Verhältnis der Anregungsintensitäten r systematisch variiert. In Abb. 6 ist die angepaßte berechnete $\Delta m = 2$ -Signalkurve zusammen mit experimentellen Signalwerten dargestellt.

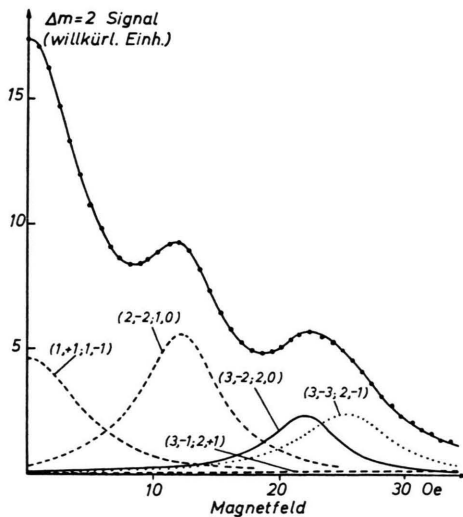


Abb. 6. Anpassung einer berechneten $\Delta m = 2$ -level-crossing-Signalkurve an die experimentellen Werte. Bei der Rechnung war $A = 18,8$ MHz, $B = 2,9$ MHz, $\tau = 1,59 \cdot 10^{-8}$ sec und $r = 1,44$. Außer dem berechneten Gesamtsignal sind noch einzelne Signalbeiträge $(F, m; F', m')$ eingezeichnet.

stellt, die aus den Registrierkurven entnommen wurden. Die Meßpunkte sind Mittelwerte aus mehreren Messungen; die Streuung der Einzelmessungen ist geringer als der Durchmesser der eingezeichneten Punkte. Das Signal stellt eine Überlagerung mehrerer Nullfeld-crossings, sowie der vier in Abb. 1 eingetragenen $\Delta m = 2$ -crossings dar. In Abb. 6 ist neben einem Nullfeldsignal der Beitrag der vier anderen crossings bei von Null verschiedenen Magnetfeldwerten eingezeichnet. Der Überkreuzungspunkt $(3, -1; 2, +1)$ bei etwa 44,5 Oe führt nur zu einem sehr kleinen und zugleich sehr breiten Signal, was auf die schon weitgehende Entkopplung von Hülle und Kern zurückzuführen ist. Hier weicht auch die Signalform stark von einer Lorentz-Kurve ab; das Maximum liegt bei ≈ 33 Oe. Die Tabelle zeigt die relativen Signalamplituden aller $\Delta m = 2$ -crossing-Signale. Die Amplituden sind so normiert, daß das Gesamtsignal beim Magnetfeld Null die Amplitude 1,000 hat.

$(F, m; F', m')$	Lage des Überkreuzungspunktes	Relative Signalamplitude
$(3, +3; 3, +1)$	0,0 Oe	0,075
$(3, +2; 3, 0)$	0,0 Oe	0,150
$(3, +1; 3, -1)$	0,0 Oe	0,180
$(3, 0; 3, -2)$	0,0 Oe	0,150
$(3, -1; 3, -3)$	0,0 Oe	0,075
$(2, +2; 2, 0)$	0,0 Oe	0,000
$(2, +1; 2, -1)$	0,0 Oe	0,000
$(2, 0; 2, -2)$	0,0 Oe	0,000
$(1, +1; 1, -1)$	0,0 Oe	0,262
$(2, -2; 1, 0)$	$\approx 12,5$ Oe	0,319
$(3, -2; 2, 0)$	$\approx 22,5$ Oe	0,135
$(3, -3; 2, -1)$	$\approx 26,0$ Oe	0,137
$(3, -1; 2, +1)$	$\approx 44,5$ Oe	0,0096

Tab. 1. Relative Signalamplituden der $\Delta m = 2$ level-crossing-Signale.

In Abb. 7 ist das berechnete $\Delta m = 1$ -Signal zusammen mit den experimentellen Werten dargestellt. Die Parameter sind dieselben wie in Abb. 6, lediglich das Verhältnis der Anregungsintensitäten r mußte anders gewählt werden, um optimale Anpassung zu erzielen. Dies dürfte darauf zurückzuführen sein, daß beim Umbau der Apparatur zur Beobachtung der $\Delta m = 1$ -crossing-Signale die Ankopplung des Lampenresonators geringfügig verändert wurde; dadurch wird die Entladungsintensität und auch die Selbstumkehr in der Lampe beeinflusst. Die in Abb. 7 eingetragenen experimentellen Punkte sind Mittelwerte aus 5 Meßkurven; die Fehlerschranken geben

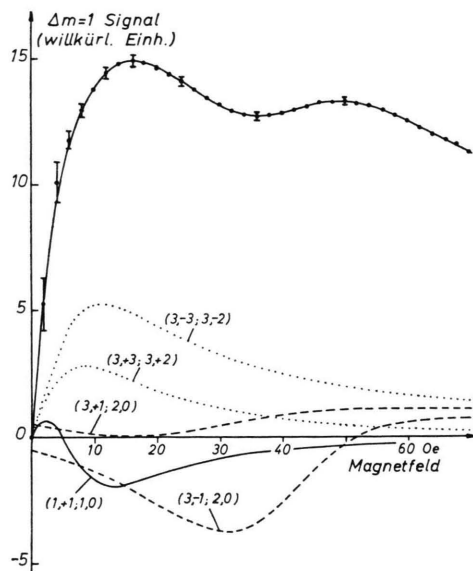


Abb. 7. Anpassung einer berechneten $\Delta m=1$ -level-crossing-Signalkurve an die experimentellen Werte. Bei der Rechnung war $A=18,8$ MHz, $B=2,9$ MHz, $\tau=1,59 \cdot 10^{-8}$ sec und $r=1,28$. Die gerechnete Kurve ist beim Feldwert 24 Oe an die experimentellen Punkte angepaßt. Außer dem berechneten Gesamtsignal sind noch einzelne Signalbeiträge ($F, m; F', m'$) eingezeichnet.

den dreifachen mittleren quadratischen Fehler an. Neben dem Gesamtsignal sind in Abb. 7 zwei Nullfeld-crossings eingezeichnet, sowie der Verlauf der crossing-Signale $(1, +1; 1, 0)$ und $(3, -1; 2, 0)$. Bei letzteren erkennt man deutlich die starken Abweichungen von der Form einer Dispersionskurve, die durch die Veränderung der Matrixelemente im Feld verursacht werden. Außerdem ist noch als Beispiel ein Signalanteil aufgetragen, der aus der kohärenten Anregung der Terme $(3, +1)$ und $(2, 0)$ resultiert. Diese „Kohärenz“ zeigt eine beträchtliche Feldabhängigkeit, die durch den Verlauf der Energieterme und die Veränderung der Matrixelemente durch die zunehmende Mischung der Nullfeldeigenfunktionen bedingt ist. Man erkennt daraus, daß die Struktur auf der Flanke des Gesamtsignals keinesfalls nur auf die $\Delta m=1$ -Überkreuzung bei 52 Oe zurückzuführen ist, sondern auch die Feldabhängigkeit der Matrixelemente in der BREITschen Formel widerspiegelt. Insgesamt war das $\Delta m=1$ -Signal weniger empfindlich auf die Wahl der Hfs-Kopplungskonstanten A und B , so daß zur genauen Auswertung vor allem die $\Delta m=2$ -Signale herangezogen wurden.

Die Abbildungen 8 und 9 zeigen Ausschnitte aus Anpassungskurven für verschieden gewählte Hfs-

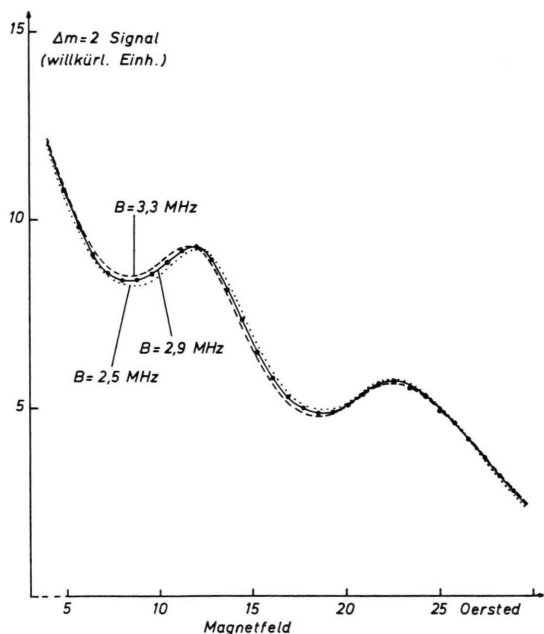


Abb. 8. Vergleich von experimentellen und theoretischen Werten (Ausschnitt). Die theoretischen Kurven wurden für $A=18,8$ MHz, $\tau=1,59 \cdot 10^{-8}$ sec, $r=1,44$ und drei verschiedene Werte von B berechnet. Die Streuung der Meßwerte ist kleiner als der Durchmesser der eingezeichneten Punkte.

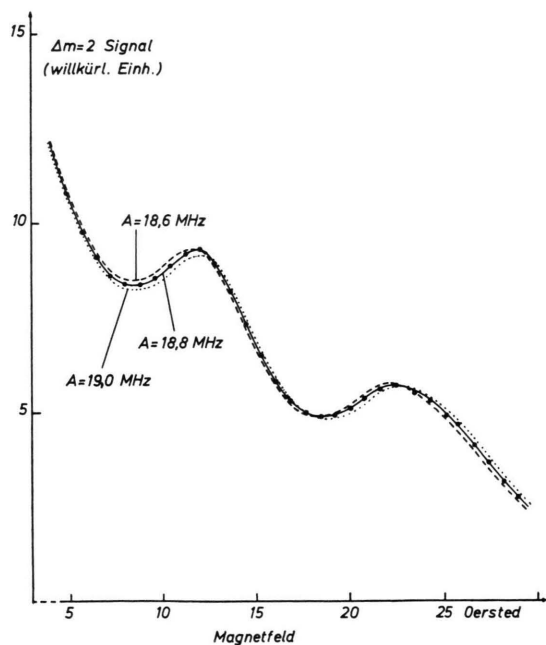


Abb. 9. Vergleich von experimentellen und theoretischen Werten (Ausschnitt). Die theoretischen Kurven wurden für $B=2,9$ MHz, $\tau=1,59 \cdot 10^{-8}$ sec, $r=1,44$ und drei verschiedene Werte von A berechnet. Die Streuung der Meßwerte ist kleiner als der Durchmesser der eingezeichneten Punkte.

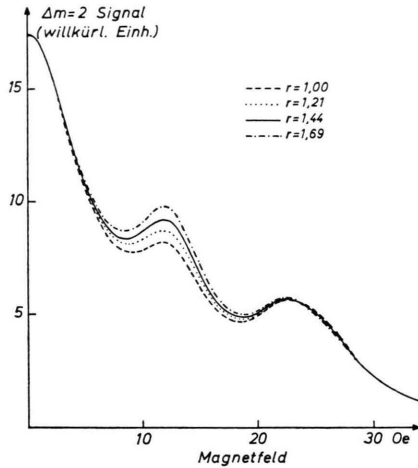


Abb. 10. Einfluß des Lampenparameters r auf die Signalkurven. Die Kurven wurden für $A=18,8$ MHz, $B=2,9$ MHz, $\tau=1,59 \cdot 10^{-8}$ sec und vier verschiedene Werte für r berechnet.

Kopplungskonstanten. In Abb. 10 ist der Einfluß des „Lampenparameters“ r auf die Signalform dargestellt. Man erkennt, daß die Variation von r die Lage der Maxima und Minima nur geringfügig verschiebt und im wesentlichen die Höhe des Maximums bei ≈ 12 Oe verändert. Die erforderliche Wahl von r wird entscheidend von der Lampe bestimmt: Bei sehr schwach brennender HF-Entladung erhielt man Signale, die sich mit $r=1$ anpassen ließen. Bei intensiv brennender Lampenentladung ist dagegen $r > 1$ d. h. die Anregungsintensität für den Hfs-Term $\varphi=1$ ist größer als die für den Term $\varphi=2$; dies weist auf eine beträchtliche Selbstumkehr in der Lampe hin.

Als Ergebnis der Anpassung ergeben sich folgende Werte für die Hfs-Kopplungskonstanten A und B , sowie für die Lebensdauer τ des $3^2P_{3/2}$ -Zustandes:

$$\begin{aligned} A &= (18,80 \pm 0,15) \text{ MHz}, \\ B &= (2,9 \pm 0,3) \text{ MHz}, \\ \tau(3^2P_{3/2}) &= (1,59 \pm 0,04) \cdot 10^{-8} \text{ sec}. \end{aligned}$$

Die A - und B -Werte stimmen innerhalb der Fehlergrenzen mit den Ergebnissen der Doppelresonanzmessungen überein, wodurch das dort angewandte Auswerteverfahren trotz der eingangs erwähnten Schwierigkeiten gerechtfertigt erscheint. Auch der

Zahlenwert für τ ist in guter Übereinstimmung mit Lebensdauermessungen, die nach verschiedenen anderen Verfahren ausgeführt wurden^{30, 31}. Aus dem Verhältnis B/A kann man das elektrische Quadrupolmoment des ^{23}Na -Kerns zu

$$Q(^{23}\text{Na}) = (0,124 \pm 0,015) \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$$

berechnen³² (ohne STERNHEIMER-Korrektur³³).

Zur weiteren Steigerung der Meßgenauigkeit bei einem level-crossing-Experiment mit unvollständiger Auflösung der einzelnen Signale wurden zwei Verfahren vorgeschlagen: Bei der ersten Methode¹⁸ wird die Breite der einzelnen crossing-Signale reduziert, indem mittels einer geeigneten Impulstechnik nur das Fluoreszenzlicht von solchen Atomen beobachtet wird, die nach der Anregung eine wesentlich längere Zeit als die mittlere Lebensdauer τ im angeregten Zustand verbracht haben. Ein Nachteil bei diesem Meßverfahren ist allerdings die geringe Fluoreszenzlichtausbeute und die kompliziertere Linienform der einzelnen crossing-Signale, so daß die Anwendung dieser Technik auf den $3^2P_{3/2}$ -Zustand von Na bisher keine höhere Meßgenauigkeit als ein konventionelles level-crossing-Experiment brachte¹⁸.

Eine zweite Möglichkeit, die level-crossing-Signale voneinander zu trennen, besteht darin, daß zusätzlich durch optisches Pumpen Besetzungsdifferenzen zwischen den Zeeman-Niveaus des Grundzustandes erzeugt werden^{34, 35}. Dies führt zu einer Veränderung der Anregungsraten für die verschiedenen magnetischen Unterniveaus des angeregten Zustandes und damit im allgemeinen zu einer Änderung der relativen Signalamplituden der crossing-Signale. Im Fall des $3^2P_{3/2}$ -Zustandes von Na sollte es mit diesem Verfahren möglich sein, einzelne crossing-Signale fast vollständig zu isolieren³⁵. Jedoch liegen darüber bis jetzt noch keine experimentellen Ergebnisse vor.

Herrn Prof. Dr. H. KRÜGER danke ich für die Förderung dieser Arbeit und für sein stetes Interesse. Für die Programmierung der numerischen Rechnungen bin ich Herrn Dipl.-Math. W. SAUTTER vom Rechenzentrum der Universität Tübingen zu Dank verpflichtet. Das Bundesministerium für Wissenschaftliche Forschung unterstützte die Untersuchung durch eine Sachbeihilfe.

³⁰ E. HULPKE, E. PAUL u. W. PAUL, Z. Phys. **177**, 257 [1964].

³¹ B. P. KIBBLE, G. COPLEY u. L. KRAUSE, Phys. Rev. **153**, 9 [1967].

³² H. KOPFERMANN, Kernmomente, 2. Aufl., Akademische Verlagsges., Frankfurt (Main) 1956.

³³ R. M. STERNHEIMER, Phys. Rev. **95**, 736 [1954]; **105**, 158 [1957].

³⁴ M. KRAJČSKA-MISZCZAK, Bull. Acad. Polon. Sci. **15**, 595 [1967].

³⁵ W. E. BAYLIS, Phys. Letters **26 A**, 414 [1968].