

# Level crossing-Experimente an den Heliumzuständen $3^3\text{D}$ und $4^3\text{D}$ bei Ionenstoßanregung\*

K. BUCHHAUPT

I. Physikalisches Institut der Universität Gießen

(Z. Naturforsch. **24 a**, 1058—1062 [1969]; eingegangen am 23. April 1969)

Herrn Professor H. GOBRECHT zum 60. Geburtstag gewidmet  
K. BUCHHAUPT, W. HANLE

Es wurden die Halbwertsbreiten der Hanle-Effekt-Signale der Heliumzustände  $3^3\text{D}$  und  $4^3\text{D}$  als Funktion des Heliumdruckes bestimmt. Mit Hilfe des Dichtematrixformalismus gelang es, den mittleren  $g$ -Faktor abzuschätzen und die Lebensdauern der Zustände zu

$$\tau(3^3\text{D}) = 22 \text{ ns} \quad \text{und} \quad \tau(4^3\text{D}) = 36 \text{ ns}$$

zu berechnen. Außerdem konnten aus den Druckabhängigkeiten der Lebensdauern die Wirkungsquerschnitte für die Zerstörung der Ausrichtung (alignment) durch Stöße mit Heliumatomen im Grundzustand bestimmt werden

$$\bar{\sigma}^{(2)}(3^3\text{D}) = 7 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2, \quad \bar{\sigma}^{(2)}(4^3\text{D}) = 4 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2 \quad (T = 293 \text{ °K}).$$

Aus der Lage der level crossing-Signale ergaben sich die folgenden Feinstrukturaufspaltungen

$$\Delta(3^3\text{D}_3 - 3^3\text{D}_2) = (74,6 \pm 1,0) \text{ MHz}, \quad \Delta(4^3\text{D}_3 - 4^3\text{D}_2) = (35,8 \pm 1,0) \text{ MHz}.$$

Für den angeregten Zustand eines Atoms kann man verschiedene Lebensdauern unterscheiden, unter anderem die natürliche Lebensdauer  $\tau$  und die Lebensdauer der Ausrichtung  $\tau^{(2)}$ . Die natürliche Lebensdauer beobachtet man, wenn das Atom ohne äußere Einflüsse vom angeregten Zustand in den Grundzustand übergeht.  $\tau^{(2)}$ , die Lebensdauer der Ausrichtung, ist die Verweildauer des Atoms im Zustand der unterschiedlichen Besetzung der Zeeman-Unterniveaus mit verschiedenem  $|M_L|$ ; sie kann durch Stöße mit anderen Atomen verkürzt werden.

Die unterschiedliche Besetzung der Unterniveaus  $|M_L\rangle$  führt zu einer anisotropen Intensitätsverteilung des emittierten Lichtes<sup>1</sup>, d. h. zu einer Polarisation

$$P = (I_{\parallel} - I_{\perp}) / (I_{\parallel} + I_{\perp}), \quad (1)$$

$I_{\parallel(\perp)}$  = Intensitätskomponente mit dem elektrischen Vektor  $\parallel(\perp)$  zu einer Vorzugsrichtung.

Durch ein äußeres Magnetfeld kann man den Polarisationsgrad des Fluoreszenzlichtes beeinflussen<sup>2, 3</sup> (Hanle-Effekt, level crossing). Aus der Halbwertsbreite des Hanle-Effekt-Signales (zero-field level crossing) läßt sich bei bekanntem Landé-Fak-

tor die Lebensdauer des angeregten Zustandes berechnen. Die Lage  $H_c$  des allgemeinen level crossing-Signals ermöglicht die Bestimmung der Fein- bzw. Hyperfeinstrukturaufspaltung (im Magnetfeld  $H = 0$  Oe).

Da man durch Elektronen- oder Ionenstoßanregung eine Ausrichtung der angeregten Atome erzeugen kann<sup>4, 5</sup>, ist es möglich, an diesen Atomen Hanle-Effekt<sup>6</sup> und level crossing-Experimente<sup>7</sup> durchzuführen. Die Stoßanregung bietet gegenüber der optischen Anregung den Vorteil, daß sie nicht an so strenge Auswahlregeln gebunden ist, so daß auch Zustände angeregt werden können, die optisch nicht oder nur über Stufen erreichbar sind.

## 1. Theorie

Wie BREIT<sup>8</sup> und FRANKEN<sup>3</sup> gezeigt haben, kann man die Intensität des Fluoreszenzlichtes von Atomen in einem äußeren Magnetfeld durch

$$I(\mathbf{H}, \mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2) = \sum_{\mu\mu'} \frac{f_{M\mu} f_{\mu M'} g_{\mu M'} g_{M'\mu'}}{I^{(2)} - 2\pi i(\nu_M - \nu_{M'})h} \quad (2)$$

\* Teilergebnis aus D 26.

Sonderdruckanforderungen erbeten an: K. BUCHHAUPT, I. Physikalisches Institut, D-6300 Gießen, Leihgesterner Weg 104.

<sup>1</sup> A. C. G. MITCHELL u. M. W. ZEMANSKY, Resonance Radiation and Excited Atoms, Cambridge University Press 1961, S. 258 ff.

<sup>2</sup> W. HANLE, Z. Phys. **30**, 93 [1924]; Ergebn. Exakt. Naturw. **4**, 214 [1925].

<sup>3</sup> P. FRANKEN, Phys. Rev. **121**, 508 [1961].

<sup>4</sup> O. NEDELEC, Thèses, Grenoble 1966.

<sup>5</sup> S. H. LIN, J. Chem. Phys. **48**, 3125 [1968].

<sup>6</sup> K. BUCHHAUPT u. W. DRTEL, Z. Naturforsch. **22 a**, 2136 [1967]. — W. DRTEL, Z. Naturforsch. **24 a**, 350 [1969].

<sup>7</sup> R. D. KAUL, J. Opt. Soc. Amer. **57**, 1156 [1967]; **58**, 429 [1968].

<sup>8</sup> G. BREIT, Rev. Mod. Phys. **5**, 91 [1933].



beschreiben. Hierbei sind die

$$f_{M\mu} = \langle M | \mathbf{e}_1 \mathbf{r} | \mu \rangle$$

die Dipolmatrixelemente für den Übergang aus dem Grundzustand  $\mu$  in den angeregten Zustand  $M$  bei einer Lichteinstrahlung  $\mathbf{e}_1$ . Für

$$g_{\mu M'} = \langle \mu | \mathbf{e}_2 \mathbf{r} | M' \rangle,$$

die Matrixelemente der Emission, gilt das Entsprechende.  $(\nu_M - \nu_{M'}) h$  ist der Energieabstand der Zeeman-Unterniveaus  $|M\rangle$  und  $|M'\rangle$ .  $\Gamma^{(2)} = 1/\tau^{(2)}$  ist die reziproke Lebensdauer der Ausrichtung des Zustandes.

### 1.1. Lebensdauerbestimmung aus dem zero-field level crossing

Mit dem in Abb. 1 dargestellten experimentellen Aufbau ist es möglich, level crossing-Signale mit  $|\Delta M| = 2$  zu beobachten. Unter dieser speziellen

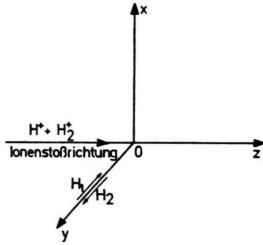


Abb. 1. Schematischer Versuchsaufbau ( $H_1$ =variables Magnetfeld,  $H_2$ =festes Magnetfeld).

Voraussetzung erhält man aus Gl. (2) für das zero-field level crossing folgende Magnetfeldabhängigkeit des Polarisationsgrades

$$P = (I_{\parallel} - I_{\perp}) / (I_{\parallel} + I_{\perp}) = P_0 / [1 + (2 g_J \tau^{(2)} \mu_0 H / \hbar)^2]; \quad (3)$$

$P_0$  = Polarisationsgrad im Magnetfeld  $H = 0$  Oe,  $g_J$  = Landé-Faktor des angeregten Zustandes,  $\mu_0$  = Bohrsches Magneton.

Aus der Halbwertbreite  $H_{1/2}$  dieser Lorentz-Kurve ergibt sich dann die Lebensdauer  $\tau^{(2)}$  des angeregten Zustandes

$$\tau^{(2)} = 1/\Gamma^{(2)} = \hbar / (2 g_J \mu_0 H_{1/2}). \quad (4)$$

### 1.2. Druckabhängigkeit der Lebensdauer

Werden angeregte Atome nicht durch äußere Einflüsse, z. B. Stöße mit anderen Atomen, gestört, so ist ihre natürliche Lebensdauer

$$\tau = 1/\Gamma.$$

In einem Gas treten Wechselwirkungen mit anderen Atomen durch Stöße auf. Dadurch kann die Ausrichtung des angeregten Zustandes verlorengehen und die Lebensdauer  $\tau^{(2)}$  verkürzt werden<sup>9</sup>. Da die Zahl der Zusammenstöße proportional der Teilchenzahl  $n$  pro Volumeneinheit und der mittleren Geschwindigkeit  $\langle v \rangle$  der Atome ist, ergibt sich für die reziproke Lebensdauer die Beziehung

$$\Gamma^{(2)} = \Gamma + n \langle v \rangle \bar{\sigma}^{(2)} \quad (5)$$

mit dem Wirkungsquerschnitt  $\bar{\sigma}^{(2)}$  für die Zerstörung der Ausrichtung. Aus der Extrapolation von  $\Gamma^{(2)}$  zum Druck  $p = 0$  Torr ( $n = 0$  Atome/cm<sup>3</sup>) erhält man die natürliche Lebensdauer  $\tau = 1/\Gamma$ .

### 1.3. Bestimmung der Feinstrukturaufspaltung

Besitzen zwei Feinstrukturterme  $|J_1\rangle$  und  $|J_2\rangle$  den Energieabstand  $\Delta_{12}$ , so kann man die Magnetfeldabhängigkeit ihrer Zeeman-Unterniveaus in der Form

$$\begin{aligned} W_{J_1} &= m_{J_1} g_{J_1} \mu_0 H, \\ W_{J_2} &= \Delta_{12} + m_{J_2} g_{J_2} \mu_0 H \end{aligned} \quad (6)$$

schreiben. Im Magnetfeld

$$H_c = \Delta_{12} / [\mu_0 (m_{J_1} g_{J_1} - m_{J_2} g_{J_2})] \quad (7)$$

sind die beiden Zeeman-Unterniveaus entartet, und man erhält ein dem Hanle-Effekt entsprechendes Resonanzsignal. Durch die experimentelle Bestimmung von  $H_c$  erhält man aus Gl. (7) die Feinstrukturaufspaltung.

## 2. Versuchsaufbau

Aus einer modifizierten Penning-Ionenquelle wurde mit Hilfe einer Extraktionsspannung von 4 keV ein Gemisch aus  $H^+$ - und  $H_2^+$ -Ionen extrahiert, fokussiert und anschließend auf eine Energie von insgesamt 15 keV nachbeschleunigt<sup>6</sup>. Durch eine Druckstufe gelangte der Ionenstrahl in den Stoßraum.

Das Heliumstoßbleuchten wurde senkrecht zum Ionenstrahl mit Hilfe eines Polarisationsfilters, eines Gittermonochromators (B a u s c h & L o m b, 1200 Striche pro mm) und eines PSEV's (E M I, 9558 QB) beobachtet. Um die Eigenpolarisation des Monochromators auszuschalten, befand sich zwischen der Polarisationsfolie und dem Monochromator ein  $\lambda/4$ -Plättchen.

Das Magnetfeld, bestehend aus einem variablen Feld  $H_1$  und einem entgegengesetzt gerichteten festen Feld  $H_2$ ,  $H = H_1 - H_2$  wurde mit zwei Spulenpaaren in Helmholtz-Anordnung erzeugt und lag parallel zur Beobachtungsrichtung. Magnetische Störfelder (Erdfeld, Streufeld des Ionenquellenmagneten) wurden durch

<sup>9</sup> D. A. LANDMAN, Phys. Rev. **173**, 33 [1968].

zwei weitere Spulenpaare in Helmholtz-Anordnung auf 50 mOe kompensiert.

Zur Verbesserung des Signal/Rausch-Verhältnisses wurden die PSEV-Signale verstärkt, in einem Vielkanalanalysator (Intertechnique SA 40 B) gespeichert und über mehrere Magnetfelddurchläufe aufsummiert. Ein Zeitgenerator steuerte die Kanalfortschaltung und das variable Magnetfeld.

### 3. Ergebnisse und Diskussion

Die Heliumzustände  $3^3\text{D}$  und  $4^3\text{D}$  wurden mit Hilfe der Übergänge  $3^3\text{D} \rightarrow 2^3\text{P}$  ( $\lambda = 5876 \text{ \AA}$ ) und  $4^3\text{D} \rightarrow 2^3\text{P}$  ( $\lambda = 4471 \text{ \AA}$ ) untersucht. Für jeden Heliumdruck wurden mehrere Signalkurven aufgenommen und die daraus folgenden Ergebnisse gemittelt. Da die Summe  $I_{\parallel}(H) + I_{\perp}(H)$  konstant war, wurde nur die Intensitätsdifferenz  $I_{\parallel}(H) - I_{\perp}(H)$  aufgezeichnet.

#### 3.1. Lebensdauern der Zustände $3^3\text{D}$ und $4^3\text{D}$

Durch Stöße mit Atomen im Grundzustand tritt eine Zerstörung der Ausrichtung im angeregten Zustand ein. Deshalb ist die Lebensdauer  $\tau^{(2)}$  der Ausrichtung und damit die Halbwertsbreite  $H_{1/2}$  der Hanle-Effekt-Signale druckabhängig. Es ergeben sich die in den Abb. 2 und 3 dargestellten Druckabhängigkeiten.

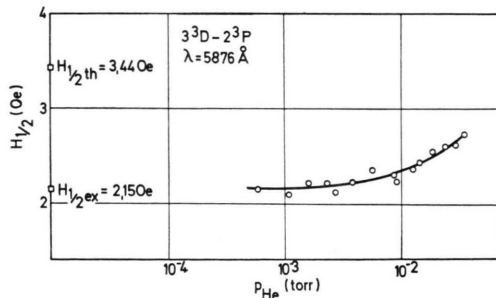


Abb. 2. Halbwertsbreiten der Hanle-Effekt-Signale als Funktion des Heliumdruckes für den Übergang  $3^3\text{D} \rightarrow 2^3\text{P}$ .

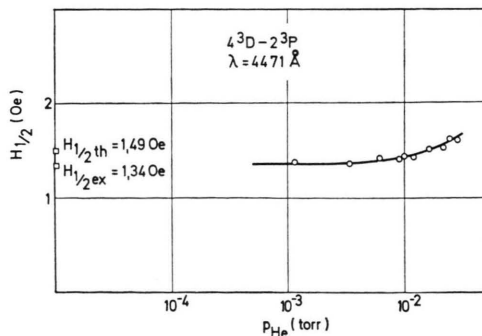


Abb. 3. Halbwertsbreite der Hanle-Effekt-Signale als Funktion des Heliumdruckes für den Übergang  $4^3\text{D} \rightarrow 2^3\text{P}$ .

Die Übergänge  $3^3\text{D}_{1,2,3} \rightarrow 3^3\text{P}_{0,1,2}$  konnten optisch nicht getrennt werden. Die Hanle-Effekt-Signale (Abb. 4) sind Überlagerungen der einzelnen Resonanzsignale der Zustände  $3^3\text{D}_{1,2,3}$ . Zur Bestimmung der Lebensdauern  $\tau^{(2)}$  aus den Halbwertsbreiten  $H_{1/2}$  muß der Landé-Faktor  $g_J$  bekannt sein. Die Zustände  $3^3\text{D}_{1,2,3}$  besitzen aber verschiedene  $g_J$ -Faktoren. Aus diesem Grunde wurde der mittlere  $g$ -Faktor für  $3^3\text{D}$  abgeschätzt.

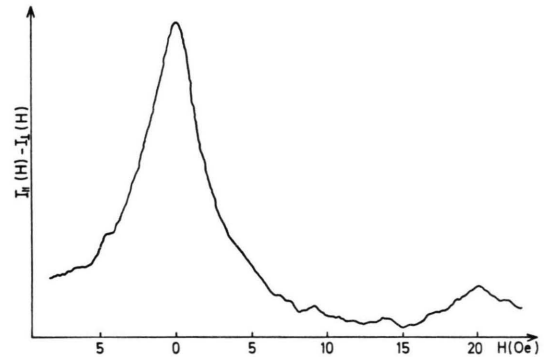


Abb. 4. Magnetfeldabhängigkeit der Intensitätsdifferenz  $I_{\parallel}(H) - I_{\perp}(H)$  für den Übergang  $3^3\text{D} \rightarrow 2^3\text{P}$  (Heliumdruck  $p = 5,5 \cdot 10^{-3}$  Torr).

DESCOUBES<sup>10</sup> hat mit Hilfe des Dichtematrixformalismus gezeigt, daß für die Intensität der Resonanzfluoreszenz bei Stoßanregung die Beziehung

$$I \sim \sum_{JM, J'M', j\mu} \langle j\mu | \mathbf{e}_\lambda \mathbf{D} | JM \rangle \langle JM | \sigma | J'M' \rangle \cdot \langle J'M' | \mathbf{e}_\lambda^* \mathbf{D} | j\mu \rangle \quad (8)$$

$\langle j\mu | \mathbf{e}_\lambda \mathbf{D} | JM \rangle$  = Matrixelement des Dipolüberganges,

$\langle JM | \sigma | J'M' \rangle$  = Matrixelement der Dichtematrix des durch Stoß angeregten Atoms

gilt. Damit ist es möglich, die relativen Intensitäten der Hanle-Effekt-Signale ( $|\Delta M| = 2$ ) zu berechnen. Sie ergeben sich zu

$$I(^3\text{D}_1) = 0,22, \quad I(^3\text{D}_2) = 0,26, \quad I(^3\text{D}_3) = 1,00. \quad (9)$$

Der mittlere  $g$ -Faktor ist unter diesen Voraussetzungen

$$g = \frac{\sum_{J=1}^3 g_J I(^3\text{D}_J)}{\sum_{J=1}^3 I(^3\text{D}_J)} = 1,18. \quad (10)$$

Aus den zum Druck  $p = 0$  Torr extrapolierten Werten  $H_{1/2 \text{ ex}}$  ergeben sich die in Tab. 1 zusammengestellten natürlichen Lebensdauern  $\tau$ .

Die bei Ionenstoßanregung gemessenen Lebensdauern sind im Vergleich zu den theoretischen Wer-

<sup>10</sup> J. P. DESCOUBES, Thèses, Paris 1967.

Zustand	$\tau$ (ns)	$p_{\text{He}}$ (torr)	
$3^3\text{D}$	13,9		Theorie <sup>11</sup>
	22	0	Ionenstoßanregung
	$17 \pm 4$	$10^{-3} - 10^{-2}$	Elektronenstoßanregung <sup>10</sup>
$4^3\text{D}$	32,2		Theorie <sup>11</sup>
	36	0	Ionenstoßanregung
	$42 \pm 4$	$10^{-3} - 10^{-2}$	Elektronenstoßanregung <sup>10</sup>

Tab. 1. Lebensdauern der Zustände  $3^3\text{D}$  und  $4^3\text{D}$ .

ten zu groß. Das kann damit erklärt werden, daß die  $3^3\text{D}$ -Zustände nicht nur direkt durch Stoß angeregt, sondern auch durch Kaskadeneffekt kohärent besetzt werden. Da die energetisch höheren Zustände  $4^3\text{P}$ ,  $5^3\text{P}$ ,  $4^3\text{F}$  und  $5^3\text{F}$  die theoretischen Lebensdauern 138 ns, 225 ns, 72,4 ns und 143 ns besitzen<sup>11</sup>, die wesentlich größer sind als die Lebensdauern der  $3^3\text{D}$ -Zustände, wird eine größere Lebensdauer gemessen.

Die aus level crossing-Experimenten bei Elektronenstoßanregung gewonnenen Lebensdauern sind bei einem Heliumdruck von  $10^{-3} - 10^{-2}$  Torr, also in einem Druckbereich, gemessen, in dem sich die Lebensdauerverkürzung durch Stöße schon deutlich bemerkbar macht.

### 3.2. Wirkungsquerschnitte für die Zerstörung der Ausrichtung

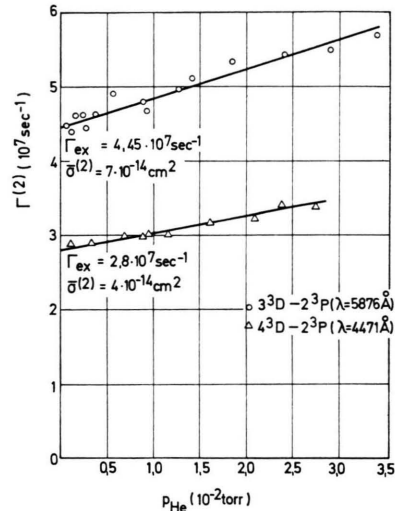
Durch die Berechnung des mittleren  $g$ -Faktors war es möglich, die Druckabhängigkeit der Niveaubreite  $\Gamma^{(2)}$  zu bestimmen (Abb. 5) und die Wirkungsquerschnitte  $\bar{\sigma}^{(2)}$  für die Zerstörung der Ausrichtung zu berechnen. Die Ergebnisse sind in Tab. 2 zusammengestellt.

Zustand	$\bar{\sigma}^2$ ( $10^{-14}\text{cm}^2$ )	$T$ ( $^\circ\text{K}$ )	
$2^3\text{P}$	0,56	303	optische Anregung <sup>9</sup>
$3^3\text{D}$	7	293	Ionenstoßanregung
$4^3\text{D}$	4	293	Ionenstoßanregung

Tab. 2. Wirkungsquerschnitte für die Zerstörung der Ausrichtung.

Diese Wirkungsquerschnitte sind mit dem von LANDMAN<sup>9</sup> für den Zustand  $2^3\text{P}$  bestimmten Wirkungsquerschnitt vergleichbar, wenn man berücksichtigt, daß die Zerstörung der Ausrichtung für wachsende Hauptquantenzahl  $n$  und Drehimpulsquantenzahl  $L$  zunimmt.

<sup>11</sup> A. H. GABRIEL u. D. O. W. HEDDLE, Proc. Roy. Soc. London **258** A, 124 [1960].

Abb. 5. Druckabhängigkeiten der reziproken Lebensdauern  $\Gamma^{(2)}$  ( $\bullet$   $3^3\text{D}$ -Zustand,  $\triangle$   $4^3\text{D}$ -Zustand).

Der Wirkungsquerschnitt für den Zustand  $3^3\text{D}$  ergibt sich genau wie die Lebensdauer dieses Zustandes wesentlich zu groß. Diese Tatsache läßt sich ebenfalls durch den Kaskadeneffekt erklären, da die Störung der höheren Niveaus größer ist als die des  $3^3\text{D}$ -Zustandes. Der sich aus den Messungen ergebende Wirkungsquerschnitt  $\bar{\sigma}^{(2)}$  für diesen Zustand ist die Summe der mit verschiedenen Gewichtsfaktoren versehenen Wirkungsquerschnitte des  $3^3\text{D}$ -Zustandes und der höheren Zustände.

### 3.3. Feinstrukturaufspaltung $\Delta(3^3\text{D}_3 - 3^3\text{D}_2)$

In Abb. 6 ist die Zeeman-Aufspaltung der Zustände  $3^3\text{D}_2$  und  $3^3\text{D}_3$  dargestellt. Aus der Theorie des Zeeman-Effektes ergeben sich die in Tab. 3 zusammengestellten Werte  $H_c$  für die Lage der crossing-Punkte mit  $|\Delta M| = 2$ .

$(M, M')$	$\mu_0 H_c / \Delta$	$H_c$ (Oe)	
		$3^3\text{D}$	$4^3\text{D}$
(3, 1)	6/17	18,9	9,86
(2, 0)	3/8	20,1	10,25
(1, -1)	2/5	21,4	11,15
(0, -2)	3/7	23,0	11,95
$\bar{H}_c$ (Oe)	0,363	20,1	10,4

Tab. 3. Lage der crossing-Punkte für die Zustände  $3^3\text{D}$  und  $4^3\text{D}$ .

Die theoretischen Lebensdauern der Zustände  $3^3\text{D}$  und  $4^3\text{D}$  sind 13,9 ns und 32,2 ns<sup>11</sup>. Entsprechend sind Halbwertsbreiten der Lorentz-Kurven von etwa

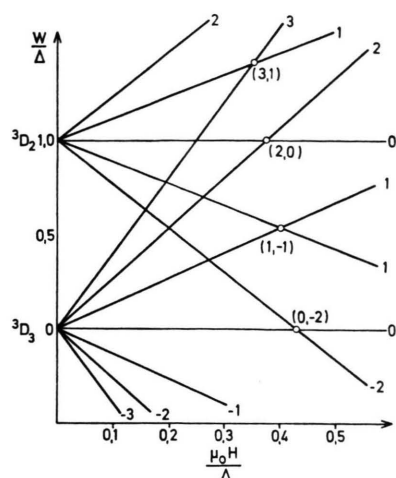


Abb. 6. Magnetfeldabhängigkeit der Zeeman-Unterniveaus der  $3D_2$ - und  $3D_3$ -Zustände ( $W$  = Zusatzenergie,  $\Delta$  = Feinstrukturaufspaltung).

3,5 Oe und 1,5 Oe zu erwarten. Es ist deshalb nicht möglich, die level crossing-Signale getrennt zu beobachten, sondern es ergibt sich eine Überlagerung der vier Signale. Mit den von DESCUBES<sup>10</sup> berechneten relativen Intensitäten der einzelnen Signale ergeben sich die in Tab. 3 angegebenen Maxima der Resonanzkurven.

Zustand	$H_c$ (Oe)	$\Delta(3D_3 - 3D_2)$ (MHz)	
$3^3D$	20,1	75	Theorie <sup>12</sup>
	20,0	$74,6 \pm 1,0$	Ionenstoßanregung
	19,8	72,5	Elektronenstoßanregung <sup>10</sup>
$4^3D$	10,4	39	Theorie <sup>10</sup>
	9,63	$35,8 \pm 1,0$	Ionenstoßanregung
	9,63	35,8	Elektronenstoßanregung <sup>10</sup>

Tab. 4. Feinstrukturaufspaltung  $\Delta(3D_3 - 3D_2)$  für die Zustände  $3^3D$  und  $4^3D$ .

Abb. 4 zeigt eine der Meßkurven für den  $3^3D$ -Zustand mit dem zero-field crossing- und dem allgemeinen level crossing-Signal bei  $H_c = 20,1$  Oe.

Eine Analyse der Meßkurven lieferte die in Tab. 4 zusammengestellten Feinstrukturaufspaltungen  $\Delta(3^3D_3 - 3^3D_2)$  und  $\Delta(4^3D_3 - 4^3D_2)$ . Zum Vergleich sind einige Ergebnisse anderer Untersuchungen aufgeführt.

Herrn Prof. Dr. W. HANLE möchte ich für die Ermöglichung dieser Arbeit und sein stetes förderndes Interesse danken. Herrn Dr. W. DRTIL danke ich für seine Hilfe und zahlreichen Anregungen.

<sup>12</sup> G. ARAKI, Proc. Phys. Math. Soc. Japan **19**, 128 [1937].