

Einfluß eines homogenen Magnetfeldes auf die Polarisation von Fluoreszenzlinien des Cu I-Spektrums nach Elektronenstoßanregung

G. ANGER*, M. v. HARTROTT**, H.-U. MARTYN*** und G. v. OPPEN

Institut für Kernphysik der Technischen Universität Berlin

(Z. Naturforsch. 25 a, 1529—1536 [1970]; eingegangen am 3. August 1970)

Influence of a homogeneous magnetic field on the polarization of fluorescence lines of the Cu I-spectrum induced by electron bombardment

Using atomic beam techniques the polarization of fluorescence lines of the Cu I-spectrum was measured in dependence on magnetic field strength. The Cu-atoms were excited by electron bombardment and the magnetic field was parallel to the electron beam. Due to the decoupling of the hyperfine-structure of excited levels of the Cu I-spectrum the polarization of some observed spectral lines [3247 Å ($4p\ ^2P_{3/2} - 4s\ ^2S_{1/2}$); 5153 Å ($4d\ ^2D_{3/2} - 4p\ ^2P_{1/2}$); 5218 Å ($4d\ ^2D_{5/2} - 4p\ ^2P_{3/2}$)] increases with increasing magnetic field strength. These polarization measurements, which correspond to investigations on resonance scattering of light done by HEYDENBURG et al., can be used for a determination of hfs-coupling constants of excited states. The measurements on the 3247 Å-resonance line are used for a comparison with results of accurate level-crossing-experiments. Satisfactory agreement is obtained. The discussion of the polarization of the 5153 Å-line yields an A -factor of (9.6 ± 1.0) MHz and a lifetime of $\tau \approx 1.7 \cdot 10^{-8}$ sec for the $4d\ ^2D_{3/2}$ -level.

Einleitung

Zur Untersuchung der Hyperfeinstruktur (Hfs) angeregter Atomzustände, die nicht mit dem Grundzustand unter Aussendung elektrischer Dipolstrahlung kombinieren, ist es in manchen Fällen möglich, nach Elektronenstoßanregung level-crossing-Signale im Fluoreszenzlicht nachzuweisen¹. Eine andere Methode zur Bestimmung der Hfs-Aufspaltung solcher Zustände ergibt sich — analog zu den Experimenten von HEYDENBURG et al.², in denen die Polarisation der Spektrallinien nach Resonanzstreuung von Licht untersucht wurde — aus dem Einfluß eines homogenen Magnetfeldes auf die Eigenfunktionen der angeregten Atome (Hfs-Entkopplung) und aus der damit verbundenen Abhängigkeit des Polarisationsgrades der Fluoreszenzstrahlung von der Stärke des Magnetfeldes. Anders als bei level-crossing-Experimenten kann bei dieser Methode der Elektronenstrom parallel zum Magnetfeld gerichtet sein, so daß die Ablenkung der Elektronen im Magnetfeld sich weniger störend auswirkt. Ferner darf man im allgemeinen größere Signale erwarten, da bei diesem Meßverfahren eine summarische Änderung der Polarisation beob-

achtet wird, die aus Zustandsänderungen aller Zeeman-Terme des Hfs-Multipletts resultiert, während bei der level-crossing-Technik die aus der Kreuzung nur zweier Zeeman-Terme resultierenden Polarisationsänderungen die Signalhöhe bestimmen. Dagegen hat man allerdings einen Verlust an Genauigkeit um etwa den Faktor Γ/A (Γ = natürliche Energiebreite, A = A -Faktor der Hfs) in Rechnung zu stellen. Dieser Nachteil ist aber unwesentlich bei der Untersuchung von Termen, bei denen Γ und A von gleicher Größenordnung sind.

In der vorliegenden Arbeit wurde in einem Atomstrahlexperiment die Polarisation von Fluoreszenzlinien des Cu I-Spektrums nach Elektronenstoßanregung untersucht. Der Elektronenstrahl war parallel zu einem homogenen Magnetfeld gerichtet und das Fluoreszenzlicht wurde in Richtung senkrecht zum Magnetfeld beobachtet. Auf Grund der Entkopplung der Hfs angeregter Terme des Cu I-Spektrums (Abb. 1) wurde an den Spektrallinien $\lambda = 3247$ Å ($4p\ ^2P_{3/2} - 4s\ ^2S_{1/2}$), $\lambda = 5153$ Å ($4d\ ^2D_{3/2} - 4p\ ^2P_{1/2}$) und $\lambda = 5218$ Å ($4d\ ^2D_{5/2} - 4p\ ^2P_{3/2}$) mit steigendem Magnetfeld eine Zunahme des Polarisationsgrades beobachtet. Um Hfs-Konstanten aus den Meßergebnissen zu bestimmen, ist

*** Dipl. Phys. H.-U. MARTYN, z.Z. III. Phys. Institut der TH D-5100 Aachen, Jägerstraße.

¹ J. P. DESCUBES, Thesis, Paris 1967.

² N. P. HEYDENBURG, Phys. Rev. **43**, 640 [1933]; Phys. Rev. **46**, 802 [1934] — A. ELLETT u. N. P. HEYDENBURG, Phys. Rev. **46**, 583 [1934].

Sonderdruckanforderungen an Prof. Dr. G. v. OPPEN, Institut für Kernphysik der Techn. Universität 1000 Berlin 37, Rondellstraße 5

* Dipl. Phys. G. ANGER, Institut für Kernphysik der TU D-1000 Berlin 37, Rondellstraße 5.

** Dr. M. v. HARTROTT, z.Z. D-6900 Heidelberg 1, Eichendorffstraße 19.



zunächst zu untersuchen, in welchem Maße die einzelnen Terme des Cu I-Spektrums direkt oder in Kaskadenprozessen durch Elektronenstoß angeregt werden. Unter der Annahme, daß sich die Polarisationsänderungen der 3247 Å- und 5153 Å-Linie auf die Hfs-Entkopplung im $4p\ ^2P_{3/2}$ bzw. $4d\ ^2D_{3/2}$ -Term zurückführen lassen, werden die gemessenen Polarisationskurven mit berechneten verglichen und die A-Faktoren dieser Terme bestimmt. Da die Hfs-Konstanten des $4p\ ^2P_{3/2}$ -Terms aus *level-crossing*-Experimenten³ bekannt sind, ist in diesem Fall eine genauere Diskussion der experimentellen Kurve möglich.

Messung der Polarisierung nach Elektronenstoßanregung

Der Versuchsaufbau ist in Abb. 2 schematisch dargestellt. Ein Cu-Atomstrahl (natürliches Isotopengemisch: 69% Cu⁶³, 31% Cu⁶⁵) wurde mit einem durch Elektronenstoß geheizten Ofen aus Molybdän erzeugt und passierte 10 cm vom Ofen entfernt eine Elektronenstoßanordnung, deren Elektronenstrom parallel zu einem äußeren Magnetfeld gerichtet war. Als Elektronenquelle diente eine indirekt geheizte Ba-Oxyd-Kathode mit $4 \times 16 \text{ mm}^2$ Oberfläche. Die Elektronen wurden mit einer Lochblende beschleunigt und in den feldfreien Stoßraum geführt (Elektronenstrom bei 20 eV ca. 100 μA). Das von den angeregten Cu-Atomen senkrecht zum Magnetfeld emittierte Fluoreszenzlicht wurde auf den Eintrittsspalt eines Gittermonochromators abgebildet und nach Selektion der zu untersuchenden

Spektrallinie mit einem Photomultiplier registriert. Zur Messung der Polarisierung passierte die Fluoreszenzstrahlung vor dem Eintrittsspalt des Gittermonochromators eine Polarisationsfolie, deren Polarisationsvektor abwechselnd parallel oder senkrecht zur Magnetfeldrichtung eingestellt werden konnte. Zur Eliminierung der Eigenpolarisation der Nachweisapparatur, insbesondere des Gittermonochromators, diente ein keilförmiger Quarzkristall als Depolarisator⁴; oder es wurde die Eigenpolarisation aus Messungen mit unpolarisierten Lichtquellen bestimmt und bei der Auswertung berücksichtigt. Gemessen wurde abwechselnd die Intensität des parallel und senkrecht zur Magnetfeldrichtung polarisierten Fluoreszenzlichtes, um aus den Intensitätswerten I_{\parallel} und I_{\perp} den Polarisationsgrad

$$P = \frac{I_{\parallel} - I_{\perp}}{I_{\parallel} + I_{\perp}}$$

zu bestimmen. Dabei wurde die Lichtintensität durch Pulsung des Elektronenstroms moduliert, und die Signale wurden mit einem Lock-in-Verstärker phasenempfindlich verstärkt, gleichgerichtet und auf einem Schreiber registriert.

Untersucht wurden die Linien

$$\lambda (4p\ ^2P_{1/2} - 4s\ ^2S_{1/2}) = 3274 \text{ Å},$$

$$\lambda (4p\ ^2P_{3/2} - 4s\ ^2S_{1/2}) = 3247 \text{ Å},$$

$$\lambda (4d\ ^2D_{3/2} - 4p\ ^2P_{1/2}) = 5153 \text{ Å}$$

$$\text{und } \lambda (4d\ ^2D_{5/2} - 4p\ ^2P_{3/2}) = 5218 \text{ Å}.$$

Die Spektrallinie bei $\lambda = 3274 \text{ Å}$ ist nach Elektronenstoßanregung unpolarisiert und diente zur Überprüfung der Polarisationsmessungen. Die Spektrallinie bei $\lambda = 5218 \text{ Å}$ konnte mit Rücksicht auf die

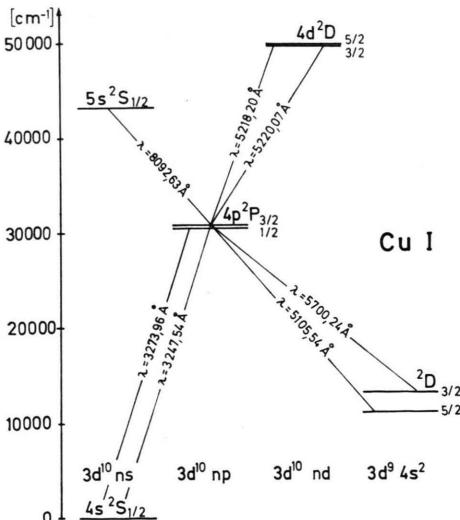


Abb. 1. Ausschnitt aus dem Termschema des Cu I-Spektrums (das Ionisationspotential liegt bei I.P. = 7,724 eV = $62317,2 \text{ cm}^{-1}$). Neben dem Übergang mit $\lambda = 5220,07 \text{ Å}$ tritt außerdem ein Übergang mit $\lambda = 5153,24 \text{ Å}$ auf.

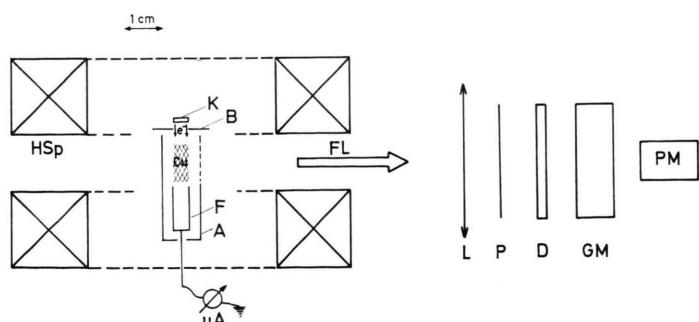


Abb. 2. Schematische Darstellung der Versuchsanordnung. Cu = Cu-Atomstrahl (Flugrichtung liegt senkrecht zur Zeichenebene), e^- = Richtung des Elektronenstromes, FL = Ausstrahlrichtung des beobachteten Fluoreszenzlichtes, HSp = Magnetspulenpaar in Helmholz-Anordnung, K = indirekt geheizte BaO-Kathode (Potential variabel), B = geerdete Blende, F = Faraday-Becher, A = geerdete Abschirmung des Stoßraumes, L = Linse, P = Polarisationsfolie, D = Depolarisator, GM = Gittermonochromator, PM = Photomultiplier.

³ J. NEY, Z. Phys. **196**, 53 [1966].

⁴ V. L. FEDOROV, u. A. P. MEZENTSEV, Opt. Spectry. **19**, 5 [1965].

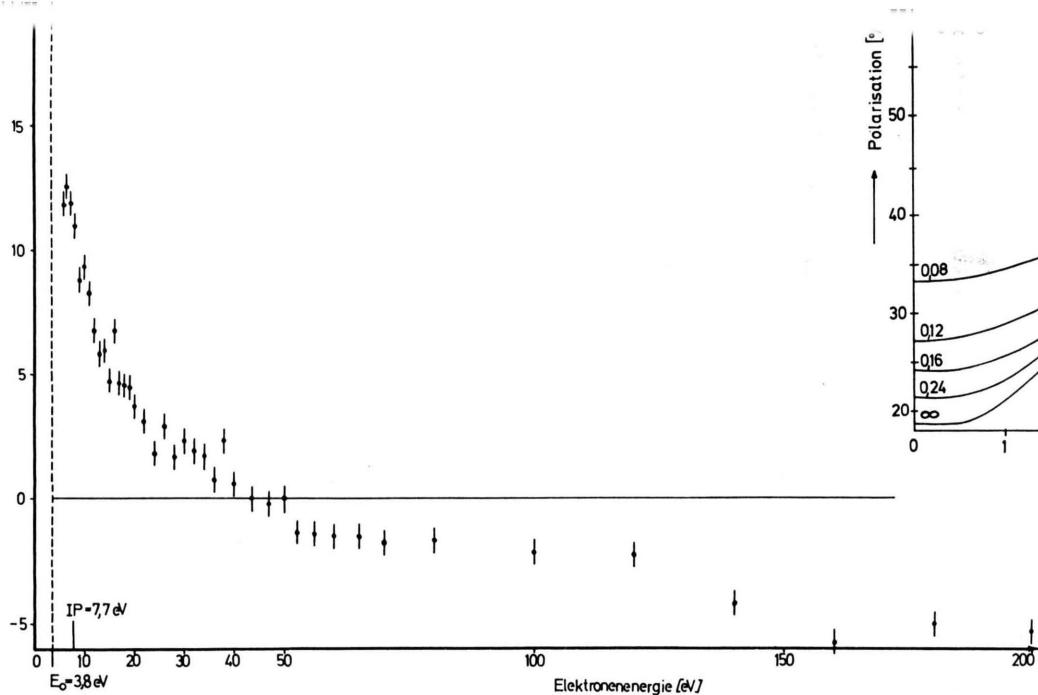


Abb. 3. Polarisation der 3247 Å-Linie in Abhängigkeit von der Energie der anregenden Elektronen.
($E_0 = 3,8$ eV = Energie der Anregungsschwelle, $IP = 7,7$ eV = Ionisationspotential neutraler Cu-A-ome).

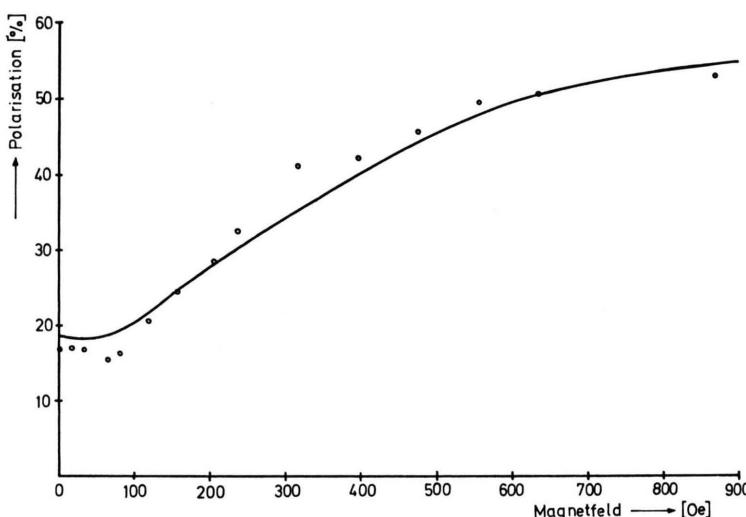


Abb. 6. Vergleich der gemessenen Polarisationswerte mit berechneten Polarisationskurven a) für die $\lambda = 3247$ Å-Linie. Hierbei wurden die (um 3% erhöhten) experimentellen Polarisationswerte (Abb. 4a) nach Gl. (3) mit $C = 1,35$ auf $P^{(2)}$ -Werte umgerechnet, b) für die $\lambda = 5153$ Å-Linie. Die bei Elektronenenergien $E = 15$ eV und $E = 20$ eV gemessenen Polarisationswerte (Abb. 4b) wurden mit $C = 0,55$ bzw. $C = 1,0$ auf $P^{(2)}$ -Werte umgerechnet (durch 0 bzw. x gekennzeichnet). Die berechneten Kurven ergeben sich aus Abb. 5, falls a) $A/g_J = 149$ MHz, $\tau A = \infty$ und b) $A/g_J = 12$ MHz, $\tau A = 0,16$.

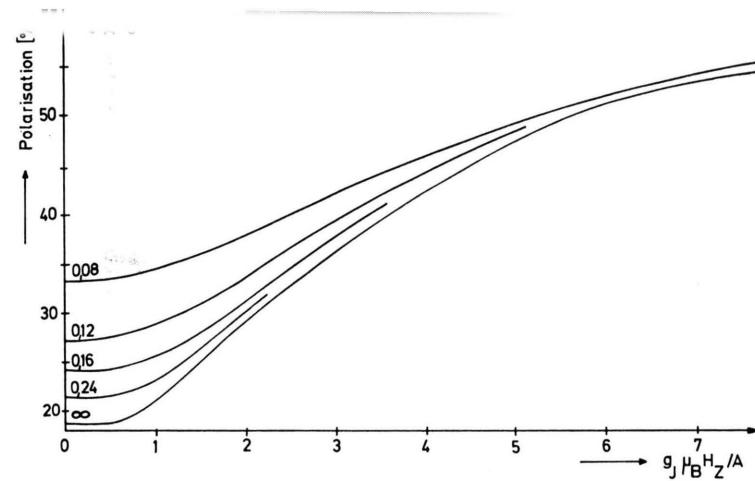
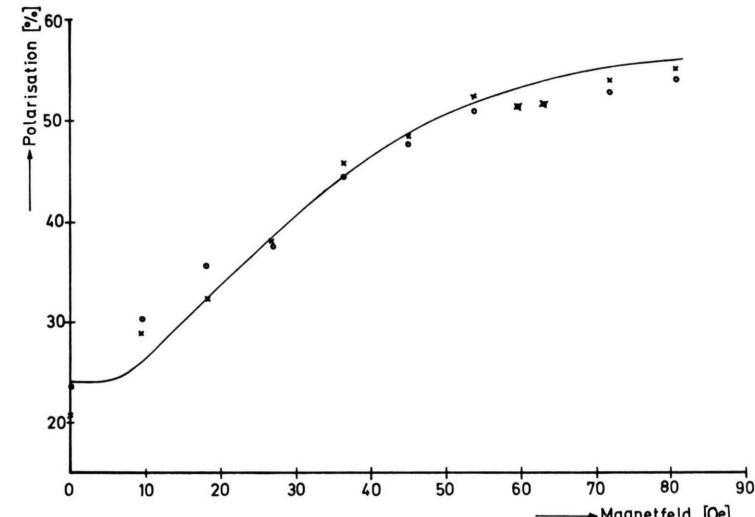


Abb. 5. Berechnete Polarisation der Fluoreszenzstrahlung, die beim Zerfall eines Terms mit Drehimpuls $J = 3/2$ emittiert wird, falls (wie z. B. an der Anregungsschwelle) für den Anregungsprozeß die Auswahlregel $\Delta m_L = 0$ gültig ist. $A = A$ -Faktor, $g_J = g_J$ -Faktor, τ = Lebensdauer des betrachteten Terms (der B -Faktor wurde zu $B = 0$ angenommen); H_z = Magnetfeldstärke, μ_B = Bohrsches Magneton.



erforderliche große Transmission des Gittermonochromators nicht von dem benachbarten Multiplettübergang

$$\lambda (4d\ ^2D_{3/2} - 4p\ ^2P_{3/2}) = 5220 \text{ \AA}$$

getrennt werden. Wegen des Intensitätsverhältnisses von

$$I(5218)/I(5220) = 9:1$$

(bei reiner LS-Kopplung) kann der Beitrag der 5220 \AA-Linie zur Polarisation näherungsweise vernachlässigt werden.

Die Abb. 3 und 4 geben die Meßergebnisse wieder. Außer in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke wurde die Polarisation der 3247 \AA-Linie in Abhängigkeit von der Elektronenenergie bei verschwindendem Magnetfeld gemessen (Abb. 3). Die Anregungsschwelle liegt bei 3,8 eV. Die Polarisation P (3247 \AA) wurde bei Elektronenenergien zwischen 6 eV und 200 eV gemessen und nimmt von + 12% auf - 5% ab. Bei linearer Extrapolation auf die Anregungsschwelle findet man ungefähr eine Polarisation von 14%.

Die Abhängigkeit des Polarisationsgrades der drei untersuchten Spektrallinien von der Stärke des Magnetfeldes zeigen die Abbildungen 4a - 4c. Während bei der Resonanzlinie bei 3247 \AA entsprechend der stärkeren Hfs-Kopplung im $^2P_{3/2}$ -

Term die Polarisation erst bei Feldern von einigen 100 Oe zunimmt, ändert sich die Polarisation der Spektrallinien bei 5153 \AA und 5218 \AA bereits bei Feldstärken von einigen 10 Oe.

Diskussion der Magnetfeldabhängigkeit der Polarisation

Die Polarisation der Fluoreszenzstrahlung, die ein Atom nach Anregung durch inelastische Streuung langsamer Elektronen emittiert, resultiert aus der an der Anregungsschwelle gültigen Auswahlregel $\Delta m_L = 0$; d. h. die z -Komponente (z -Achse = Richtung der einlaufenden Elektronen) des Bahndrehimpulses L der gebundenen Elektronen ändert sich während des Anregungsprozesses nicht⁵. Diese Auswahlregel ergibt sich in einfacher Weise aus der Tatsache, daß die einlaufende Elektronenwelle e^{ikz} keine Bahndrehimpulskomponente in z -Richtung hat und daß sich bei Prozessen nahe der Anregungsschwelle die inelastisch gestreuten Elektronen wegen ihrer verschwindend kleinen Energie in s -Zuständen befinden. Im Hinblick auf einen ausreichend großen Anregungsquerschnitt lag die Energie der anregenden Elektronen im Experiment erheblich über der Anregungsschwelle. Das bedeutet einerseits, daß die Auswahlregel $\Delta m_L = 0$ während des

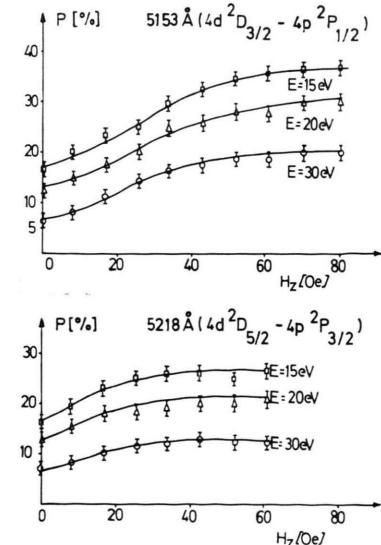
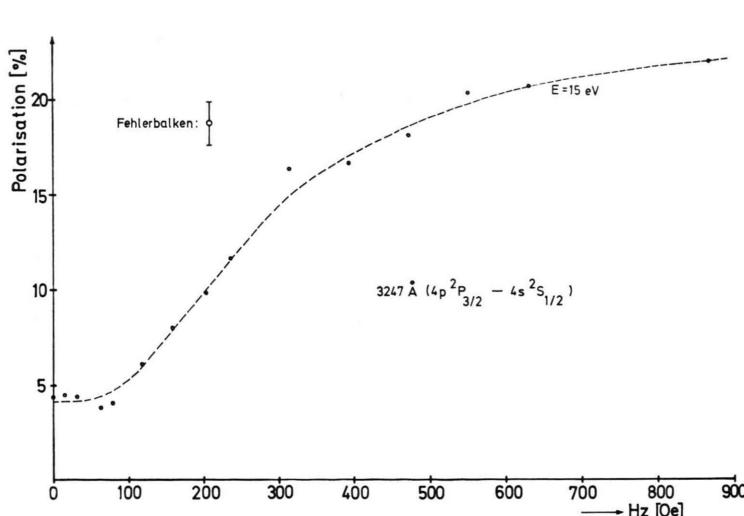


Abb. 4. Polarisation der a) 3247 \AA-, b) 5153 \AA- und c) 5218 \AA-Linie in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke H_z bei verschiedenen Energien E der anregenden Elektronen.

⁵ H. W. B. SKINNER u. E. T. S. APPLEYARD, Proc. Roy. Soc. London A 11, 224 [1928].

Anregungsprozesse nicht mehr streng gültig ist. Vielmehr können die inelastisch gestreuten Elektronen auch Zustände mit $L > 0$ einnehmen, und es sind daher auch Anregungsprozesse mit $\Delta m_L > 0$ möglich. Andererseits ist außer der direkten Anregung eines Terms vom Grundzustand aus auch eine Anregung höher liegender Terme möglich, die in Kaskaden in den zu untersuchenden Term zerfallen (Kaskadenprozesse).

Für die Diskussion der Magnetfeldabhängigkeit der Polarisation der Fluoreszenzstrahlung gehen wir davon aus^{6,7}, daß Anregung des Atoms durch Elektronenstoß, Änderung des Zustandsvektors während der Lebensdauer des angeregten Terms und Zerfall des Atoms unter spontaner Emission der Fluoreszenzstrahlung als zeitlich aufeinanderfolgende Teilprozesse betrachtet werden können (s. auch den folgenden Abschnitt). Unabhängig von der Stärke des Magnetfeldes befinden sich die Atome vor der Anregung im Grundzustand, dessen Unterniveaus statistisch besetzt sind, und die (unpolarisierten) Elektronen bewegen sich mit vorgegebener Energie, die durch die Wahl der Potentiale der Elektronenstoßanordnung festgelegt wird, parallel zur Magnetfeldrichtung. Der — im Vergleich zur Larmor-Präzession der gebundenen Elektronen — kurzzeitige Prozeß der Elektronenstoßanregung ist ebenfalls unabhängig von der Stärke des Magnetfeldes. Das äußere Magnetfeld und ebenso die Hfs- und Fs-Kopplung haben daher erst nach dem Prozeß der Elektronenstoßanregung Einfluß auf die Polarisation des Fluoreszenzlichtes, und zwar auf Grund der Abhängigkeit der Energien und Eigenfunktionen der Zeeman-Terme der Hfs von der Magnetfeldstärke. Der kurzzeitige Zerfallsprozeß ist wieder unabhängig von der Magnetfeldstärke.

Bei direkter Anregung desjenigen Terms, bei dessen Zerfall die beobachtete Fluoreszenzstrahlung emittiert wird, kann daher die Magnetfeldabhängigkeit der Polarisation Aussagen über charakteristische Eigenschaften dieses Terms, wie Lebensdauer und Hfs-Konstanten ermöglichen. Solche Untersuchungen werden aber durch das Auftreten von Kaskadenerfällen und (bei höheren Atomstrahlldichten) durch Resonanzstreuung der emittierten Fluoreszenzstrahlung innerhalb des Atomstrahls kompliziert. Beide Effekte können einen magnetfeldabhängigen depolarisierenden Einfluß auf die

beobachtete Fluoreszenzstrahlung ausüben und sind daher bei einer Auswertung der Meßergebnisse gegebenenfalls zu berücksichtigen.

Die Resonanzstreuung spielt nur in solchen Fällen eine wesentliche Rolle, in denen die beobachtete Fluoreszenzstrahlung einem Übergang in den Atomgrundzustand entspricht; bei den vorliegenden Messungen also nur im Falle der 3247 Å-Linie. Der Einfluß der Resonanzstreuung auf die Polarisation kann experimentell erfaßt werden, in dem man die Polarisation bei verschiedenen Atomstrahlldichten untersucht. Aus solchen Messungen ergab sich, daß man die auf eine Atomstrahlldichte $\rho = 0$ extrapolierte Polarisation P (3247 Å) erhält, wenn man zu den in % gemessenen Werten des Polarisationsgrades (Abb. 4) ungefähr (unabhängig von der Magnetfeldstärke) 3% hinzuzählt. Eine entsprechende Korrektur an der Polarisationskurve der Abb. 3 (Energieabhängigkeit) bringt den auf die Anregungsschwelle E_0 extrapolierten Wert von $P_{\text{exp}}(E = E_0) = 14\%$ in die Nähe des berechneten Wertes (s. Abb. 5) von $P_{\text{th}}(E = E_0) = 19\%$.

Die indirekte Anregung über Kaskadenprozesse kann im Gegensatz zur Resonanzstreuung die Deutung der Polarisationskurven aller Spektrallinien erschweren. Es ist bei jedem Term einzeln zu untersuchen, ob die direkte Anregung überwiegt oder ob anderenfalls eine Anregung über Kaskaden die Magnetfeldabhängigkeit der Polarisation beeinflußt.

Betrachten wir zunächst den Übergang $4p^2P_{3/2} - 4s^2S_{1/2}$ mit $\lambda = 3247$ Å. Durch Kaskadenprozesse wird der $4p^2P_{3/2}$ -Term hauptsächlich von $ns^2S_{1/2}$ ($n \geq 5$) oder $nd^2D_{5/2}$ -Terminen ($n \geq 4$) bevölkert. Da s-Zustände durch Elektronenstoß stets unpolarisiert angeregt werden, kann die Anregung des $2P_{3/2}$ -Terms über einen $2S_{1/2}$ -Term nur zu einem konstanten unpolarisierten Untergrund des Fluoreszenzlichtes der 3247 Å-Linie führen und hat daher keinen Einfluß auf die Magnetfeldabhängigkeit der Polarisierung P (3247 Å), sondern lediglich auf deren absoluten Wert. Dagegen kann die Anregung über einen $2D$ -Term grundsätzlich zu einer Magnetfeldabhängigkeit von P (3247 Å) führen, die nicht mit den Eigenschaften des $4p^2P_{3/2}$ -Terms verknüpft ist. Entsprechend der sehr viel kleineren Fs-Aufspaltung ist aber auch die Hfs-Aufspaltung der $2D$ -Terme erheblich kleiner als diejenige des $4p^2P_{3/2}$ -Terms. Daher sind Polarisationsänderungen

⁶ O. NEDELEC, J. Phys. Paris **27**, 660 [1966].

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

gen, die mit der Entkopplung der Hfs von 2D -Terme im Magnetfeld verknüpft sind, nur bei relativ kleinen Feldstärken von einigen 10 Oe möglich, während die Entkopplung der Hfs des $^2P_{3/2}$ -Terms sich erst bei einigen 100 Oe auf P (3247 Å) auswirkt. Im Experiment wurden bei Magnetfeldern bis zu ca. 80 Oe keine Polarisationsänderungen innerhalb der Meßgenauigkeit beobachtet, d. h. Kaskadenprozesse über 2D -Terme beeinflussen innerhalb der Meßgenauigkeit die Magnetfeldabhängigkeit der Polarisierung P (3247 Å) nicht. Im Einklang hiermit ergaben Messungen des Intensitätsverhältnisses der Spektrallinien bei $\lambda = 3247$ Å und $\lambda = 5220$ Å, daß der $4p^2P_{3/2}$ -Term nur zu ca. 8% durch Kaskadenprozesse über die $4d^2D$ -Terme bevölkert wird. Daher wurden bei der Auswertung in diesem Fall Kaskadeneffekte vernachlässigt.

Die Polarisationskurve P (5153 Å) wird ebenfalls unter Vernachlässigung von Kaskadeneffekten ausgewertet, da der $4d^2D_{3/2}$ -Term wesentlich nur durch Kaskadenprozesse, die über einen $n p^2P_{1/2}$ - oder $n f^2F_{5/2}$ -Term laufen, angeregt werden kann. Die Anregung über $^2P_{1/2}$ -Terme führt ebenso wie eine Anregung über $^2S_{1/2}$ -Terme nur zu einem konstanten unpolarisierten Untergrund, und die Anregung über $n f^2F_{5/2}$ -Terme sollte wieder wegen der geringeren Anregungsquerschnitte, die bei einem hohen Drehimpulsübertrag zu erwarten sind, und wegen der kleineren Hfs-Aufspaltungen vernachlässigbar sein. Komplizierter ist die Situation bei der Anregung des $4d^2D_{5/2}$ -Terms, der möglicherweise erheblich durch Kaskadenprozesse über $n p^2P_{3/2}$ -Terme angeregt wird. Die Hfs-Aufspaltung dieser Terme kann von ähnlicher Größe wie diejenige des $4d^2D_{5/2}$ -Terms sein. Ohne eine detaillierte Untersuchung des Anregungsprozesses ist in diesem Fall schwer zu entscheiden, ob die Magnetfeldabhängigkeit der Polarisationskurve P (5218 Å) auf die Entkopplung der Hfs des $4d^2D_{5/2}$ -Terms oder eines höher liegenden $4n^2P_{3/2}$ -Terms zurückzuführen ist. Es wird daher im folgenden keine genauere Analyse dieser Polarisationskurve durchgeführt.

Auswertung der Polarisationskurven

Der untersuchte Prozeß der Elektronenstoßanregung freier Atome mit nachfolgender Emission von Fluoreszenzstrahlung darf, wie erwähnt, in drei aufeinanderfolgende Teilprozesse zerlegt werden⁶:

1. Anregung des Atoms durch Elektronenstoß auf Grund der elektrostatischen Wechselwirkung e^2/r_{12} zwischen den einfallenden Elektronen und den gebundenen Valenzelektronen.

2. Entwicklung der Eigenzustände des angeregten Atoms innerhalb der Lebensdauer (unter dem Einfluß von Hfs-Kopplung und äußerem Magnetfeld).

3. Emission des Fluoreszenzlichtes.

Für diese Dreiteilung, bei der von Kaskadenprozessen abgesehen wurde, ist es wesentlich, daß Anregung und Zerfall des angeregten Zustandes als plötzliche Änderungen aufgefaßt werden können⁷, d. h. die Dauer dieser Prozesse ist kurz im Vergleich zur Lebensdauer des angeregten Zustands und zu der Periode der Präzessionsbewegungen von Hülle und Kerndrehimpuls. Entsprechende Vorstellungen kommen z. B. auch in der Theorie der gestörten γ - γ -Winkelkorrelation zum Tragen⁸.

Um die Polarisierung der Fluoreszenzstrahlung in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke zu berechnen, betrachten wir zunächst die Dichtematrix σ , die die Atome (des Beobachtungsvolumens) im angeregten Zustand beschreibt. Nach Ermittlung des stationären Ausdrucks für die vom Magnetfeld und den Hfs-Konstanten abhängige Dichtematrix kann der Polarisationsgrad mit Hilfe der bekannten relativen Übergangswahrscheinlichkeiten des beobachteten Dipolübergangs direkt angegeben werden. Zunächst ist entsprechend der angegebenen Dreiteilung die zeitliche Änderung $d\sigma/dt$ die Summe aus drei Termen⁶:

$$\frac{d}{dt} \sigma = \frac{d^{(1)}}{dt} \sigma + \frac{d^{(2)}}{dt} \sigma + \frac{d^{(3)}}{dt} \sigma, \quad (1)$$

wobei im stationären Fall $d\sigma/dt = 0$ ist.

Der Term $d^{(1)}\sigma/dt$ beschreibt den Anregungsprozeß und ist mit den Wirkungsquerschnitten für Elektronenstoßanregung verknüpft. In der Darstellung, in der die Dichtematrix nach Zuständen $|SLI, m_S m_L m_I\rangle$ entwickelt wird, ist $d^{(1)}\sigma/dt$ eine Diagonalmatrix; die Quantisierungsachse ist dabei parallel zur Elektronenstoßrichtung angenommen. Da die für die Elektronenstoßanregung effektiven Wirkungsquerschnitte $Q |m_L|$ unabhängig von der Richtung des Elektronen- und Kernspins und vom Vorzeichen der Zeeman-Quantenzahl m_L des Bahn-

⁸ A. ABRAGAM u. R. V. POUND, Phys. Rev. **92**, 943 [1953].

drehimpulses sind⁹, findet man für die Diagonalelemente

$$\begin{aligned} \langle S L I, m_S m_L m_I | \frac{d^{(1)}\sigma}{dt} | S L I, m_S m_L m_I \rangle \\ = \text{const} \times Q | m_L |. \end{aligned}$$

Der Term $d^{(2)}\sigma/dt$ beschreibt die zeitliche Entwicklung des angeregten Zustands, die sich aus dem Hamilton-Operator für die Hfs-Kopplung und die Kopplung an das äußere Magnetfeld ergibt:

$$d^{(2)}\sigma/dt = -i(\mathcal{H}\sigma - \sigma\mathcal{H}) = -i[\mathcal{H}, \sigma].$$

Der den Zerfall beschreibende Term $d^{(3)}\sigma/dt$ ergibt sich aus der natürlichen Lebensdauer $\tau = 1/\Gamma$ des angeregten Terms, und man kann phänomenologisch ansetzen:

$$d^{(3)}\sigma/dt = -\Gamma\sigma.$$

Im folgenden seien nun im Hinblick auf eine Auswertung der gemessenen Polarisationskurven die Dichtematrizen der angeregten $4p^2P_{3/2}$ - und $4d^2D_{3/2}$ -Terme diskutiert. In der Darstellung $|S L, J m_J, I m_I\rangle$ hängt die dann diagonale Anregungsmatrix $d^{(1)}\sigma/dt$ für beide Terme jeweils nur von den beiden Anregungsquerschnitten $Q|m_J| = Q_{3/2}$ und $Q_{1/2}$ ab. Es ist

$$\begin{aligned} \langle S L, J = 3/2, m_J = \pm 3/2, I m_I | \frac{d^{(1)}}{dt} \sigma | S L, \\ J = 3/2, m_J = \pm 3/2, I m_I \rangle = \text{const} \times Q_{3/2}, \\ \langle S L, J = 3/2, m_J = \pm 1/2, I m_I | \frac{d^{(1)}}{dt} \sigma | S L, \\ J = 3/2, m_J = \pm 1/2, I m_I \rangle = \text{const} \times Q_{1/2}. \end{aligned}$$

In der Nähe der Anregungsschwelle ist $Q_{3/2}/Q_{1/2} < 1$, wobei das genaue Verhältnis vor allem von der Energie der einfallenden Elektronen abhängt. Zur Auswertung der Polarisationskurven zerlegen wir die Anregungsmatrix in zwei Teilmatrizen:

$$\begin{aligned} d^{(1)}\sigma/dt = \text{const} \times Q_{3/2} \times E \\ + (d^{(1)}\sigma/dt - \text{const} \times Q_{3/2} \times E) = \varrho_1 + \varrho_2. \quad (2) \end{aligned}$$

Der erste Summand ist ein Vielfaches der Einheitsmatrix E und beschreibt unpolarisiert angeregte Atome; der zweite Summand beschreibt Atome, die nur in Zustände mit $m_J = \pm 1/2$ angeregt werden. Eine solche Anregung erwartet man z.B. bei Anregung durch Elektronenstoß an der Anregungs-

schwelle; oder auch bei Anregung durch Licht, wenn von einem unpolarisierten Zustand mit $J = 1/2$ Zustände mit $J = 3/2$ durch Einstrahlung von π -Licht angeregt werden. Entsprechend der Zerlegung von $d^{(1)}\sigma/dt$ zerlegen wir auch die Lösung von Gl. (1) in zwei Summanden

$$\sigma = \sigma_1 + \sigma_2$$

wobei σ_1 und σ_2 Lösungen der Gleichungen

$$\varrho_1 - i[\mathcal{H}, \sigma_1] - \Gamma\sigma_1 = 0 \quad (3a)$$

$$\text{und} \quad \varrho_2 - i[\mathcal{H}, \sigma_2] - \Gamma\sigma_2 = 0 \quad (3b)$$

sind. Offensichtlich ist $\sigma_1 = \text{const} \cdot Q_{3/2}E/\Gamma$ proportional zur Einheitsmatrix, beschreibt also unpolarisierte Atome. Dementsprechend ist das Licht, das von den mit σ_1 beschriebenen Atomen emittiert wird, ebenfalls unpolarisiert: $I_{\parallel}^{(1)} = I_{\perp}^{(1)} = I_0$, wobei I_{\parallel} und I_{\perp} die Intensitäten der linear polarisierten Komponenten des in Beobachtungsrichtung emittierten Lichtes sind.

Die genaue Gestalt der Dichtematrix σ_2 hängt von der Magnetfeldstärke, den Hfs-Kopplungs-constanten und der Lebensdauer des angeregten Zustands ab. Formal erhält man¹:

$$\varrho_{mm'}^{(2)} - i(\omega_m - \omega_{m'})\sigma_{mm'}^{(2)} - \Gamma\sigma_{mm'}^{(2)} = 0$$

und folglich

$$\sigma_{mm'}^{(2)} = \frac{\varrho_{mm'}^{(2)}}{\Gamma + i(\omega_m - \omega_{m'})};$$

(ω_m und $\omega_{m'}$ sind die Eigenwerte des Hamilton-Operators \mathcal{H} zu den Eigenzuständen $|m\rangle$ bzw. $|m'\rangle$, nach denen die Dichtematrizen hier entwickelt zu denken sind). Die Intensitäten der Lichtkomponenten $I_{\perp}^{(2)}$ und $I_{\parallel}^{(2)}$ sind proportional zu¹

$$\sum_{mm'\mu} \langle \mu | \mathbf{e}_\lambda \mathbf{D} | m \rangle \sigma_{mm'}^{(2)} \langle m' | \mathbf{e}_\lambda \mathbf{D} | \mu \rangle.$$

Dabei ist \mathbf{D} der elektrische Dipoloperator, \mathbf{e}_λ ein Einheitsvektor in Polarisationsrichtung der beobachteten Lichtkomponenten I_{\parallel} und I_{\perp} . Die Summe erstreckt sich über alle Zeeman-Zustände μ des Grundzustands und alle Paare von Zeeman-Zuständen m, m' des angeregten Zustands. Die Polarisierung $P^{(2)} = I_{\parallel}^{(2)} - I_{\perp}^{(2)}/(I_{\parallel}^{(2)} + I_{\perp}^{(2)})$ des Lichtes, das von den Atomen σ_2 emittiert wird, wurde in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke H_z (bezogen auf die Hfs-Aufspaltung) für verschiedene Lebensdauern τ des angeregten Zustands berechnet (s. Abb. 5). Vor einem Vergleich dieser Kurven mit

⁹ I. C. PERSIVAL u. M. J. SEATON, Phil. Trans. Roy. Soc. London **251**, 113 [1958].

der Polarisation P des im Experiment beobachteten Lichtes ist noch das von den Atomen σ_1 emittierte Licht I_0 zu berücksichtigen. Man erhält

$$P = \frac{(I_{\parallel}^{(2)} - I_{\perp}^{(2)})}{(I_{\parallel}^{(2)} + I_{\perp}^{(2)} + 2 I_0)}.$$

Wir nehmen nun gemäß den Ausführungen des vorigen Abschnitts an, daß Spur $\varrho^{(1)}/\text{Spur } \varrho^{(2)} = 2 Q_{3/2}/(Q_{1/2} - Q_{3/2})$ unabhängig von der Stärke des Magnetfelds ist und somit auch $3 I^0/I_{\parallel}^{(2)} + 2 I_{\perp}^{(2)} = C$ konstant ist. Ist C bekannt, so läßt sich $P^{(2)}$ aus den experimentellen Polarisationswerten P gemäß der Beziehung

$$P^{(2)} = \frac{1 + C}{1/P + (1/3)C} \quad (4)$$

berechnen. Aus einem Vergleich mit den berechneten Kurven (Abb. 5) ergeben sich dann Aussagen über den A -Faktor und die Lebensdauer des untersuchten Terms.

Zur Auswertung der experimentellen Polarisationswerte wurde im Einzelnen folgendermaßen vorgegangen: Unabhängig von der Größe der Hfs-Konstanten und der natürlichen Lebensdauer nimmt $P^{(2)}$ für die Terme mit $J = 3/2$ bei großen Magnetfeldstärken den Wert $P^{(2)} \approx 60\%$ an. Durch Anpassung der bei hohen Feldstärken gemessenen Polarisationswerte an die berechneten Werte für $P^{(2)}$ kann daher die Konstante C bestimmt werden. Mit den so bestimmten Konstanten C wurden dann nach Gl. (4) die gemessenen Polarisationswerte auf $P^{(2)}$ -Werte umgerechnet und mit den berechneten Kurven verglichen (Abb. 6a, b).

Im Fall des $4p^2P_{3/2}$ -Terms (Abb. 6a) wurde dabei im Hinblick auf die Depolarisation durch Resonanzstreuung der 3247 \AA -Linie (s.o.) eine Korrektur der experimentellen Polarisationskurven um 3% berücksichtigt. Die theoretische Kurve steht innerhalb der Fehlergrenzen im Einklang mit den experimentellen Werten. Sie ergibt sich aus den Kurven der Abb. 5 unter der Annahme $A(4p^2P_{3/2})/g_J(4p^2P_{3/2}) = 149 \text{ MHz}$ und $\tau A = \infty$. Diese Werte erhält man aus level-crossing-Experimenten³, wenn man die A -Faktoren der beiden Cu-Isotope Cu⁶³ und Cu⁶⁵ [$A(\text{Cu}^{63}) = 194,7 \text{ MHz}$, $A(\text{Cu}^{65}) = 208,6 \text{ MHz}$] entsprechend dem natürlichen Isotopengemisch (69% bzw. 31%) mittelt und berücksichtigt, daß die natürliche Energiebreite des $4p^2P_{3/2}$ -Terms $1/2\pi\tau = 23 \text{ MHz} \ll A$ ist.

Im Fall des $4d^2D_{3/2}$ -Terms (Abb. 6) wurde versucht, durch geeignete Wahl des A -Faktors und der

Lebensdauer die theoretischen Kurven an die experimentellen Polarisationswerte anzupassen. Gute Übereinstimmung ergab sich für $A(4d^2D_{3/2})/g_J(4d^2D_{3/2}) = 12 \text{ MHz}$ und $\tau A = 0,16$. Bei reiner Russell-Saunders-Kopplung ist $g_J(4d^2D_{3/2}) = 0,8$. Mit diesem g_J -Wert erhält man $A(4d^2D_{3/2}) = (9,6 \pm 1,0) \text{ MHz}$ und $\tau(4d^2D_{3/2}) \approx 1,7 \cdot 10^{-8} \text{ sec}$. Diese Werte stimmen mit theoretischen Werten überein. Für den A -Faktor erhält man nach der Goudsmit-Formel¹⁰

$$\frac{A(4d^2D_{3/2})}{A(4p^2P_{3/2})} = \frac{\delta W(4d^2D)}{\delta W(4p^2P)} \cdot \frac{9}{5} \cdot \frac{Z_i(p)}{Z_i(d)}$$

(δW = Feinstrukturaufspaltung, Z_i = innere Kernladungszahl), d.h. für $Z_i(p) = Z_i(d)$ ist $A(2D_{3/2}) \approx 10 \text{ MHz}$, und für die Lebensdauer findet man mit der Coulomb-Näherung¹¹

$$\tau \approx 1,2 \cdot 10^{-8} \text{ sec.}$$

Das hier benutzte Meßverfahren, bei dem die Depolarisation der Fluoreszenzstrahlung auf Grund der Hfs-Kopplung der Atomhülle an den Atomkern untersucht wird, scheint für Hfs-Untersuchungen höher angeregter Atomzustände nützlich zu sein. Das zeigen insbesondere die Messungen an der 3247 \AA -Linie, die in guter Übereinstimmung mit (in diesem Fall genaueren) level-crossing-Experimenten stehen. Bei ähnlichen Untersuchungen an Feinstrukturternen mit höheren Drehimpulsen ($J \geq 2$) wird allerdings eine Auswertung dadurch erschwert, daß die Anregungsmatrix, die hier durch die beiden Parameter $Q_{1/2}$ und $Q_{3/2}$ bestimmt wurde, von mehr als zwei Parametern abhängt. Bei Termen mit größeren Drehimpulsen hat man daher außer der hier eingeführten Konstanten C weitere Größen zu bestimmen, um aus den experimentellen Polarisationswerten die Polarisation an der Anregungsschwelle zu finden.

Herrn Prof. Dr. H. BUCKA gilt unser herzlicher Dank für viele anregende Diskussionen und sein stetes Interesse an der Arbeit. Die Deutsche Forschungsgemeinschaft stellte dankenswerterweise verschiedene Meßgeräte zur Verfügung.

¹⁰ siehe z.B. H. KOPFERMANN, Kernmomente, 2. Aufl., Akademische Verlagsgesellschaft, Frankfurt/Main, 1956 — Geringe Beimischungen von Zuständen des anomalen Teils des Cu I-Spektrums, in dem die abgeschlossene $3d^1$ -Schale aufgebrochen wird, zu den Zustandsfunktionen der hier untersuchten Terme können einen erheblichen Einfluß auf die Hfs-Aufspaltung haben. Bei der Abschätzung nach der Goudsmit-Formel wurden solche Beimischungen nicht berücksichtigt.

¹¹ D. R. BATES u. A. DAMGAARD, Phil. Trans. Roy. Soc. London **242**, 101 [1949].