

# Hyperfeinstruktur, Stark-Effekt und Lebensdauern in den angeregten $5d6s6p \text{ } ^2D_{3/2, 5/2}$ -Zuständen des Lanthan I-Spektrums \*

A. HESE und G. BÜLDT

Institut für Kernphysik der Technischen Universität Berlin

(Z. Naturforsch. 25 a, 1537—1545 [1970]; eingegangen am 16. August 1970)

## *Hyperfine Structure, Stark-Effect and Lifetimes of the Excited $5d6s6p \text{ } ^2D_{3/2, 5/2}$ -States of the Lanthanum I Spectrum*

The levelcrossing method has been used for an investigation of the hyperfine structure and lifetimes in the excited  $5d6s6p \text{ } ^2D_{3/2, 5/2}$ -states of Lanthanum I. From a detailed analysis of the measured change in intensity of the resonance light the following hyperfine interaction constants and lifetimes were deduced:

$$\begin{aligned} 5d6s6p \text{ } ^2D_{3/2} & \left\{ \begin{array}{l} A = +143,18 (11) \frac{gJ}{0,802} \text{ Mc} \\ B = + 1,27 (37) \text{ Mc} \\ \tau = 14,2 (9) \text{ ns} \end{array} \right. \\ 5d6s6p \text{ } ^2D_{5/2} & \left\{ \begin{array}{l} A = + 63,41 (21) \frac{gJ}{1,186} \text{ Mc} \\ B = - 13,3 (14) \text{ Mc} \\ \tau = 15,2 (10) \text{ ns} \end{array} \right. \end{aligned}$$

Applying an additional homogeneous electric field parallel to the usual magnetic field the constants  $\beta$  of the quadratic Stark effect in the  $^2D$ -states were derived from the observed shifts of the levelcrossing signals:

$$\begin{aligned} \beta(^2D_{3/2}) &= +0,095 (17) \frac{\text{Mc}}{(\text{kV/cm})^2}, \\ \beta(^2D_{5/2}) &= -0,0075 (25) \frac{\text{Mc}}{(\text{kV/cm})^2}. \end{aligned}$$

The experimental results are interpreted theoretically by the concept of intermediate coupling using appropriate eigenvectors. The observed lifetimes and the  $\beta$ -values are compared with the Bates and Damgaard approximation.

## Einleitung

In den komplexen Spektren schwerer Elemente ist es oft nicht möglich, allein aus der Kenntnis der Energiewerte und  $g_J$ -Faktoren zuverlässig auf Eigenvektoren und Radialwellenfunktionen zu schließen. Dagegen führt die Messung von Hyperfeinstruktur-(Hfs) Aufspaltungskonstanten zu Einelektronenmatrixelementen und bildet oft einen bequemen Test von Eigenvektoren in mittlerer Kopplung, falls genaue Werte für die Kernmomente bekannt sind. Durch Lebensdauerbestimmungen und in letzter Zeit in steigendem Maße auch durch Stark-Effektuntersu-

chungen<sup>1, 2</sup> lassen sich Werte für die Oszillatorenstärken ableiten, die zu einem empfindlichen Test von Radialwellenfunktionen und Radialintegralen beitragen können. Wie eine theoretische Untersuchung<sup>3</sup> zeigte, verhindert im Lanthan I-Spektrum die starke Konfigurationswechselwirkung zwischen den Termen der Konfigurationen  $5d6s6p$  und  $5d^26p$  eine zufriedenstellende Interpretation der Meßergebnisse. Abbildung 1 zeigt in einem Ausschnitt aus diesem Spektrum die Konfiguration  $5d6s6p$  und einige benachbarte Terme der Konfigurationen  $5d^26p$  und  $6s^26p$ .

Neben der Doppelresonanzmethode<sup>4</sup> hat sich die Levelcrossing-Technik<sup>5, 6</sup> als sehr vorteilhaft bei der

\* Vorgetragen auf der 1. Konferenz über Atomspektroskopie in Paris-Orsay, 2. Juli 1969.

<sup>1</sup> A. KHADJAVI u. A. LURIO, Phys. Rev. **167**, 128 [1967].

<sup>2</sup> H. BUCKA, W. KRÄTSCHMER, V. METAG u. J. NEY, Z. Physik **218**, 83 [1969].

<sup>3</sup> A. HESE, Ann. Phys., im Druck.

<sup>4</sup> J. BROSSEL u. F. BITTER, Phys. Rev. **86**, 308 [1952].

<sup>5</sup> F. D. COLEGROVE, P. A. FRANKEN, R. R. LEWIS u. R. H. SANDS, Phys. Rev. Letters **3**, 42 [1959].

<sup>6</sup> M. E. ROSE u. R. L. CAROVILLANO, Phys. Rev. **122**, 1185 [1961].



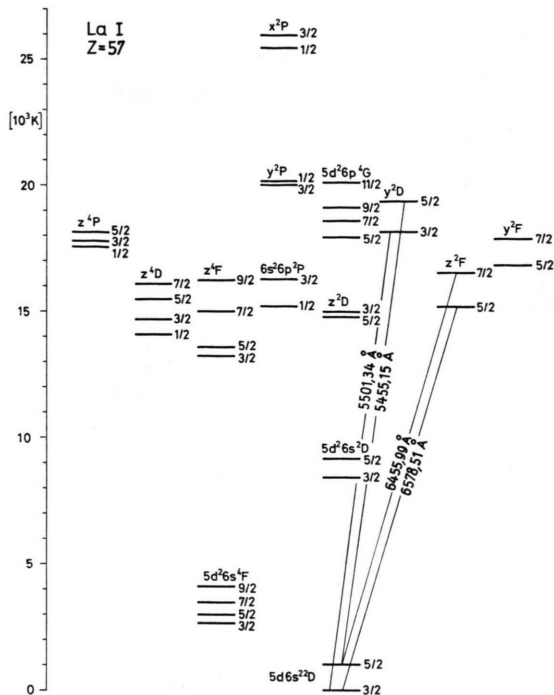


Abb. 1. Termenschema für die Konfiguration 5d6s6p im Lanthan I-Spektrum mit einigen Termen benachbarter Konfigurationen; Klassifizierung nach Moore.

Untersuchung der Hfs-Aufspaltung angeregter Atomzustände erwiesen, da die Signalbreite im wesentlichen nur durch die natürliche Strahlungsbreite gegeben ist. In dieser Arbeit wurden mit Hilfe der Levelcrossing-Methode die Aufspaltungskonstanten der magnetischen Dipol- und elektrischen Quadrupolwechselwirkung  $A$  und  $B$  sowie die Lebensdauern der 5d6s6p  $y^2D_{3/2, 5/2}$ -Terme des Lanthan I-Spektrums bestimmt. Ferner konnten durch zusätzliche Einwirkung eines homogenen elektrischen Feldes die Konstanten des quadratischen Stark-Effekts  $\beta$  in beiden Fällen gemessen werden. Da bei einem solchen Experiment über das Vorzeichen von  $\beta$  relativ zu  $A$  entschieden wird, läßt sich eine Aussage über das Vorzeichen von  $A$  machen, wenn das Vorzeichen von  $\beta$  durch theoretische Betrachtungen festgelegt werden kann. Im Falle sich überlappenden Levelcrossing-Signale ist der quadratische Stark-Effekt

geeignet diese aufzulösen und dadurch die Meßresultate abzusichern. Dieser Aspekt kommt in einigen Abbildungen der Arbeit zum Ausdruck. In vorangegangenen Doppelresonanz-<sup>7</sup> und Levelcrossing-<sup>8</sup> Experimenten wurden bereits die  $g_J$ -Faktoren, Lebensdauern und  $A$ - sowie  $B$ -Faktoren der 5d6s6p  $z^2F_{5/2, 7/2}$ -Terme ermittelt. Für die Kernmomente des bei weitem häufigsten Isotops <sup>139</sup>La mit dem Kernspin  $I = 7/2$  werden in dieser Arbeit die folgenden Werte zugrunde gelegt:

$$\mu_I = +2,778 \text{ nm}^{10}, \quad Q_{\text{Hfs}} = +0,21 \text{ barn}^{11}.$$

<sup>10</sup> R. E. SHERIFF u. D. WILLIAMS, Phys. Rev. **82**, 651 [1951].

<sup>11</sup> K. MURAKAWA, Phys. Rev. **110**, 393 [1958].

Die beobachtete Hfs-Wechselwirkung in den  $y^2D$ -Termen läßt sich größenordnungsmäßig richtig interpretieren.

Die gemessenen Lebensdauern werden einerseits mit der BATES- und DAMGAARD-Näherung<sup>12</sup> und andererseits mit beobachteten Übergangswahrscheinlichkeiten von CORLISS und BOZMAN<sup>13</sup> verglichen.

### Hyperfeinstruktur unter dem Einfluß paralleler und homogener magnetischer und elektrischer Felder

Der effektive Hamilton-Operator, der die Einwirkung äußerer homogener elektrischer und magnetischer Felder auf die Hyperfeinstruktur freier Atome beschreibt, setzt sich folgendermaßen zusammen<sup>14, 15</sup>:

$$H = A(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J}) + \frac{B}{2I(2I-1)J(2J-1)} \cdot \{3(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J})^2 + \frac{3}{2}(\mathbf{I} \cdot \mathbf{J}) - I^2 J^2\} \\ + \mu_0 g_J J_z H_z - \mu_0 g'_I I_z H_z + (\alpha + \beta J_z^2) E_z^2$$

$I$ : Kernspin,  $J$ : Elektronenhüllendrehimpuls,  $\mu_0$ : Bohrsches Magneton,  $g_J$ : Landéscher  $g$ -Faktor,  $g'_I$ : reduzierter Kern- $g$ -Faktor,  $H_z$ : äußeres Magnetfeld,  $E_z$ : äußeres elektrisches Feld.

Dabei wird vorausgesetzt, daß das Magnetfeld Spin- und Bahndrehimpuls nicht zu entkoppeln vermag und der Einfluß anderer Feinstrukturniveaus auf die Hfs des betrachteten Terms vernachlässigt werden kann.

<sup>7</sup> A. HESE u. H.-P. WEISE, erscheint demnächst.

<sup>8</sup> A. HESE, Z. Physik **236**, 42 [1970].

<sup>\*\*</sup> Die Massenzahlen und relativen Häufigkeiten im natürlichen Gemisch sind <sup>9</sup>: <sup>138</sup>La zu 0,09% und <sup>139</sup>La zu 99,91%.

<sup>9</sup> LANDOLT-BÖRNSTEIN, Zahlenwerte und Funktionen, Springer-Verlag, Berlin, Band **1**, (V) [1952].

<sup>12</sup> D. R. BATES u. A. DAMGAARD, Phil. Trans. Roy. Soc. London, Ser. A **242**, 101 [1949].

<sup>13</sup> NBS-Monograph 53 [1962].

<sup>14</sup> P. KUSCH u. V. W. HUGHES, Handbuch d. Physik, Bd. 37/1, Springer-Verlag, Berlin 1959.

<sup>15</sup> J. E. BLAMONT, Ann. Phys. Paris **2**, 55 [1957].

Die Stark-Konstanten  $\alpha$  und  $\beta$  sind folgendermaßen definiert<sup>16</sup>:

$$\alpha = \sum_{J'} \left\{ \frac{J^2 |\langle \gamma J \| \text{er} \| \gamma' J-1 \rangle|^2}{E_\gamma^J - E_{\gamma'}^{J-1}} + \frac{(J+1)^2 |\langle \gamma J \| \text{er} \| \gamma' J+1 \rangle|^2}{E_\gamma^J - E_{\gamma'}^{J+1}} \right\},$$

$$\beta = \sum_{J'} \left\{ \frac{|\langle \gamma J \| \text{er} \| \gamma' J \rangle|^2}{E_\gamma^J - E_{\gamma'}^J} - \frac{|\langle \gamma J \| \text{er} \| \gamma' J-1 \rangle|^2}{E_\gamma^J - E_{\gamma'}^{J-1}} - \frac{|\langle \gamma J \| \text{er} \| \gamma' J+1 \rangle|^2}{E_\gamma^J - E_{\gamma'}^{J+1}} \right\}.$$

Das elektrische Feld mischt dem betrachteten Term energetisch benachbarte Terme mit entgegengesetzter Parität zu, wobei die resultierenden Stark-Konstanten aus der zweiten Ordnung der Störungsrechnung im wesentlichen vom Verhältnis zwischen Oszillatorenstärke und Energieabstand abhängen.  $\alpha E_z^2$  stellt eine gemeinsame Energieverschiebung aller Hyperfeinstruktur-niveaus dar, über die in einem Levelcrossing-Experiment keine Aussage gemacht werden kann, während der Ausdruck  $\beta J_z^2 E_z^2$  zu einer relativen Energieverschiebung der Hyperfeinstruktur-niveaus gegeneinander und damit auch zu einer Verschiebung von Levelcrossing-Signalen führt.

Der Hamilton-Operator läßt drei Möglichkeiten zum Nachweis der bei einem Levelcrossing-Experiment auftretenden geringen Intensitätsänderung in der Nähe des Kreuzungspunktes zweier Hfs-Unterniveaus erkennen:

1. Messungen im Magnetfeld (Zeeman-Levelcrossings);
2. Messungen im elektrischen Feld (Stark-Effekt-Levelcrossings);
3. Gleichzeitige Anwendung beider Felder (Stark-Effekt verschobene Zeeman-Levelcrossings).

Für die ersten beiden Fälle wurde die Matrix des Hamilton-Operators für eine Anzahl von Feldstärken diagonalisiert. Den Energieverlauf im  $y^2 D_{3/2}$ -Term für Zeeman- und Stark-Aufspaltung zeigen Abb. 2 und Abb. 3 mit den in dieser Arbeit gewonnenen Wechselwirkungskonstanten. Das Zeeman-Aufspaltungsbild zeigt die für  $J=3/2$  entstehenden vier Termüberkreuzungen mit  $|\Delta m|=2$ . Von diesen ist das vierte Levelcrossing wegen des geringen Schnittwinkels der Energieniveaus und der fortgeschrittenen Entkopplung von Hüllen- und Kern-drehimpuls sehr schwer zu beobachten.

<sup>16</sup> E. U. CONDON u. G. H. SHORTLEY, The Theory of Atomic Spectra, Cambridge University Press 1964.

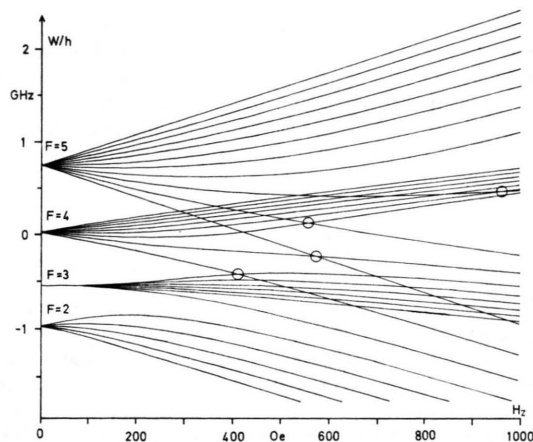


Abb. 2. Zeeman-Aufspaltung der Hfs des  $5d6s6p y^2 D_{3/2}$ -Terms im La I-Spektrum für die gemessenen Parameter  $A=143,18$  MHz,  $B=1,27$  MHz. Als  $g_J$ -Faktor wurde der bei Moore aufgeführte Wert von 0,802 verwendet. Die Kreise markieren Termüberkreuzungen mit  $\Delta m = \pm 2$ .

Wird nur ein elektrisches Feld angelegt, so tritt eine Termüberschneidung erst bei der relativ hohen Feldstärke von 78 kV/cm auf, wie in Abb. 3 dargestellt. Es erschien daher günstiger, die Stark-Konstanten  $\beta$  aus den relativen Lageänderungen der Zeeman-Levelcrossings bei verschiedenen fest eingestellten elektrischen Feldstärken zu gewinnen.

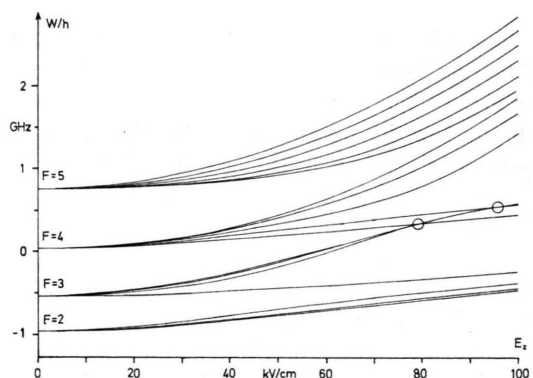


Abb. 3. Stark-Aufspaltung der Hfs des  $5d6s6p y^2 D_{3/2}$ -Terms im La I-Spektrum für die gemessene Stark-Konstante  $\beta = 0,095$  MHz/(kV/cm)<sup>-2</sup>. Die übrigen Parameter waren dieselben wie bei Abb. 2.

### Experimentelle Details

Die Resonanzstreuung von Licht einer intensiven La-Hohlkathode an einem Lanthanatomstrahl in äußeren elektrischen und magnetischen Feldern wurde in einer Vakuumkammer im Zentrum einer Helmholtz-Spulen-anordnung durchgeführt. Die Eichung der Helmholtz-Spulen erfolgte mit einer Protonenresonanzsonde. Das

zum magnetischen Feld parallele elektrische Feld wurde durch zwei Aluminiumplatten von 40 mm Durchmesser und 14,2 mm Abstand erzeugt, zwischen denen eine Spannung angelegt wurde, die maximal 40 kV erreichte. Die Richtungen des elektrischen und magnetischen Feldes standen dabei senkrecht auf einer durch Einstrahlungsrichtung, Atomstrahl- und Beobachtungsrichtung gebildeten Ebene. Die betrachteten Übergänge

$$5d6s^2 a^2 D_{3/2} \rightarrow 5d6s6p y^2 D_{3/2} : \lambda = 5501,34 \text{ \AA}, \\ 5d6s^2 a^2 D_{5/2} \rightarrow 5d6s6p y^2 D_{5/2} : \lambda = 5455,15 \text{ \AA}$$

gehören zu den intensivsten Linien des Lanthanresonanzlichts im Spektralbereich von 3000–8000 Å, wie Untersuchungen mit einem Gittermonochromator zeigten. Obwohl die beiden Resonanzlinien durch Interferenzfilter im Beobachtungsstrahlengang nicht vollständig getrennt werden konnten, ergaben sich dadurch dennoch keine Störungen, da die Levelcrossing-Signale aus dem  $y^2 D_{5/2}$ -Term im Magnetfeldbereich von 80 bis 250 Oe auftraten, während das erste Levelcrossing aus dem  $y^2 D_{3/2}$ -Term bei 411 Oe beobachtet wurde.

Zum Verdampfen des Lanthans diente ein Tantalofen, der durch eine Elektronenstoßanordnung auf eine Temperatur von ca. 1750 °C aufgeheizt wurde. Der Nachweis der Signale erfolgte durch Standard-lock-in-Technik. Nähere Einzelheiten der experimentellen Anordnung sind in früheren Arbeiten beschrieben worden<sup>2, 17</sup>.

### Versuchsdurchführung und experimentelle Resultate für den $5d6s6p y^2 D_{3/2}$ -Term

Es wurden zunächst  $A$ ,  $B$  und  $\tau$  ohne äußeres elektrisches Feld aus Lage und Breite der Levelcrossing-Signale im Magnetfeld bestimmt. Während das erste der drei beobachteten und in Abb. 2 eingetragenen Levelcrossings freistehend ist, überlappen sich die beiden folgenden geringfügig. Abbildung 4\* zeigt typische Lock-in-Registrierkurven für die drei Signale aus dem  $y^2 D_{3/2}$ -Term. Aus der Messung der Nulldurchgänge ( $H_N$ ), Maxima ( $H_{\text{Max}}$ ) und Minima ( $H_{\text{Min}}$ ) der registrierten näherungsweise Ableitung der Lorentz-Kurven für vier verschiedene Modulationsfeldstärken folgten die in Tab. 1 aufgeführten auf Modulationsfeldstärke Null extrapolierten Werte. Die Signale wurden in Richtung steigenden Magnetfeldes numeriert und durch die im schwachen Feld geltenden Quantenzahlen  $F, m; F', m'$  der beteiligten Zeeman-Unterniveaus gekennzeichnet.

Aus der Diagonalisierung des Hamilton-Operators ohne elektrisches Feld konnten für verschiedene  $B/A$ -Werte die Zeeman-Kreuzungspunkte in Form dimen-

|                       | 1. Crossing<br>( $F, m; F', m'$ ) (4, -4; 3, -2) | 2. Crossing<br>(5, -4; 4, -2) | 3. Crossing<br>(5, -5; 4, -3) |
|-----------------------|--|-------------------------------|-------------------------------|
| $H_N$ [Oe]            | $412,15 \pm 0,22$                                | $556,31 \pm 0,21$             | $574,36 \pm 0,36$             |
| $H_{\text{Min}}$ [Oe] | $408,04 \pm 0,30$                                | $552,43 \pm 0,36$             | $570,04 \pm 0,43$             |
| $H_{\text{Max}}$ [Oe] | $416,31 \pm 0,34$                                | $559,48 \pm 0,41$             | $578,96 \pm 0,60$             |

Tab. 1.

sionsloser Größen  $x_i = \mu_0 H_i / A$  gewonnen werden. Daraus wurden die Verhältnisse  $x_2/x_1$ ,  $x_3/x_1$  und  $x_3/x_2$  gebildet und diese den durch die Messung gegebenen Verhältnissen zugeordnet:

$$H_2/H_1 = 1,3498(9); \quad H_3/H_1 = 1,3935(11); \\ H_3/H_2 = 1,0324(9).$$

Abbildung 5 zeigt die mit und ohne Überlappungskorrektur für zweites und drittes Levelcrossing resultierenden  $B/A$ -Werte, deren Fehlergrenzen sich überlappen. Es ergibt sich demnach kein Hinweis auf Effekte aus der Störungsrechnung 2. Ordnung.  $A$ ,  $B/A$  und  $B$  lassen sich jedoch günstiger ausgehend vom Magnetfeldwert des 2. Kreuzungspunktes bestimmen, da dieser im Bereich der angestrebten Meßgenauigkeit nur durch  $A$  bestimmt wird. Es wurde daher  $A$  aus einer Anpassung für das 2. Levelcrossing mit Hilfe eines Rechenmaschinenprogrammes für die Breitsche Formel<sup>18</sup> zu

$$A = + (143,18 \pm 0,11) \frac{gJ}{0,802} \text{ MHz} \text{ gewonnen.}$$

Aus dem so ermittelten  $A$ -Faktor ergab sich nun mit dem Magnetfeldwert für das 1. Levelcrossing ein  $x_1$ -Wert, der zu folgendem  $B/A$ -Verhältnis führte:

$$B/A = + 0,0089 \pm 0,0026.$$

Dieser Wert ist mit seinen Fehlergrenzen in die Abb. 5 eingetragen worden und zeigt gute Übereinstimmung mit dem auf Grund der Feldstärkeverhältnisse zu erwartenden Wert für  $B/A$ . Der  $B$ -Faktor im  $y^2 D_{3/2}$ -Term ist demnach sehr klein und hat den Wert

$$B = + 1,27 \pm 0,37 \text{ MHz}.$$

Die Lebensdauer  $\tau$  wurde durch Anpassung einer Analyse der Breitschen Formel an die Signalform des 1. Levelcrossings zu

$$\tau = (1,42 \pm 0,09) \cdot 10^{-8} \text{ s}$$

<sup>17</sup> H. BUCKA, J. NEY u. G. HEPPKE, Z. Angew. Physik **20**, 354 [1966].

<sup>18</sup> G. BREIT, Rev. Mod. Phys. **5**, 91 [1933].

\* Siehe Seite 1541.

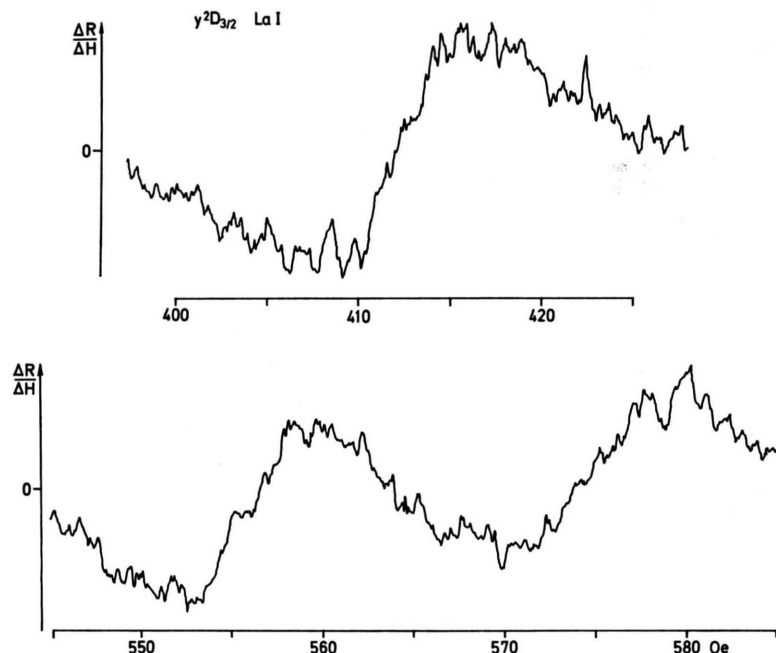


Abb. 4. Typische Lock-in-Registrierkurven für 1., 2. und 3. Levelcrossing aus dem  $y^2D_{3/2}$ -Term.

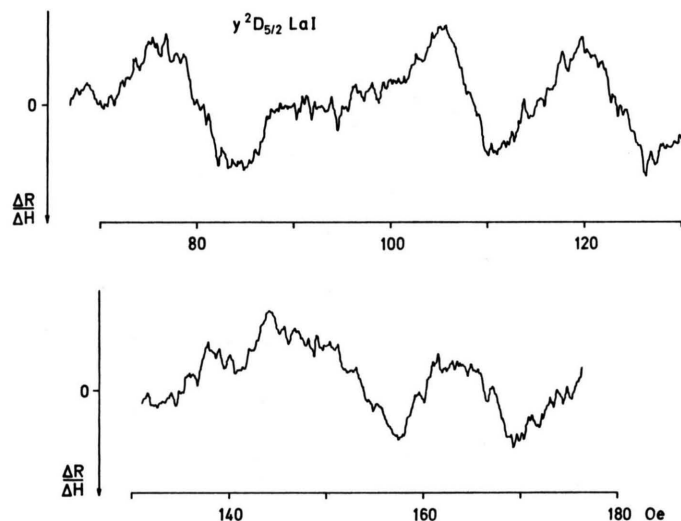


Abb. 9. Lock-in-Registrierkurven für 1., 2. und 3. Levelcrossing aus dem  $y^2D_{5/2}$ -Term in der oberen Bildhälfte und die sich stark überlappenden Levelcrossings 4—6 in der unteren Bildhälfte.

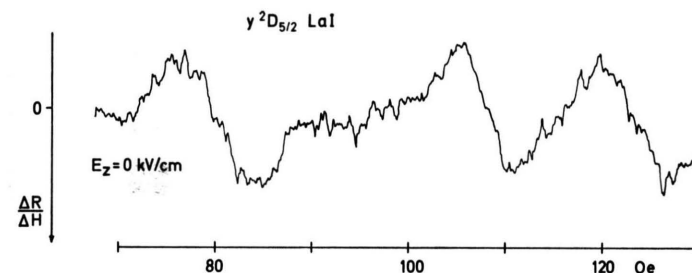


Abb. 10 a.

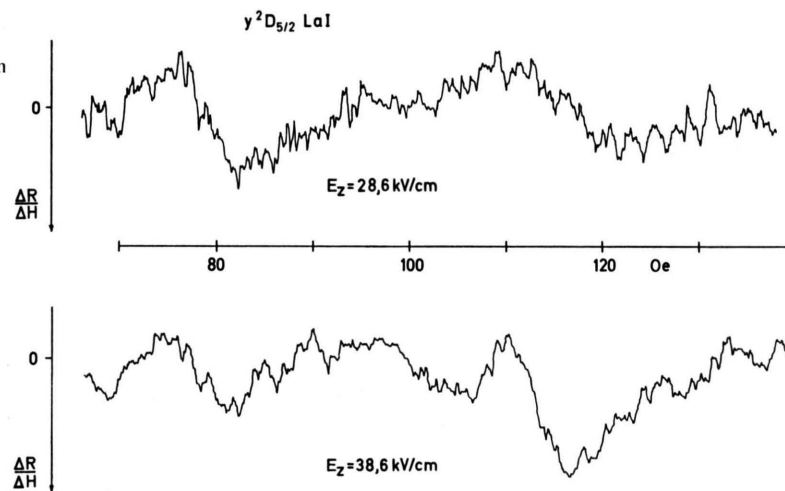


Abb. 10 b.

Abb. 10. Verschiebungen der drei ersten Levelcrossing-Signale aus dem  $y^2D_{5/2}$ -Term bei drei elektrischen Feldstärken im Vergleich zu einer Registrierkurve mit  $E_z = 0$ .



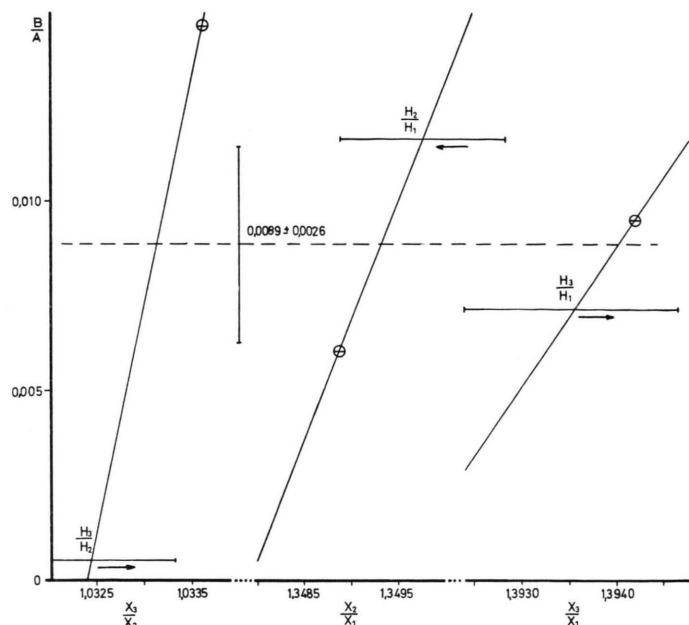


Abb. 5. Aus der Diagonalisierung der Energiematrix gewonnene Geraden für die Quotienten der Magnetfeldstärken an jeweils zwei Kreuzungspunkten. Zur Bestimmung von  $B/A$  sind die gemessenen Werte mit ihren Fehlergrenzen eingetragen.

bestimmt. Der Hanle-Effekt ist für die beiden D-Zustände zur Bestimmung der Lebensdauer relativ ungeeignet, da wegen  $I \neq J$  das Lampenprofil Einfluß auf die Signalform nehmen kann<sup>19</sup>.

Zur Messung der Konstanten  $\beta$  für den quadratischen Stark-Effekt wurde die Änderung des Resonanzlichts bei konstantem elektrischen Feld registriert. Da das elektrische Feld die Lage des 1. Levelcrossings im Vergleich zur Signalbreite von ca. 8 Oe nur geringfügig beeinflusste, erwies es sich als günstiger,  $\beta$  aus den Verschiebungen des 2. und 3. Levelcrossings zu berechnen. Hier bewirkte das elektrische Feld ein Auseinanderwandern der Crossings, und zwar war die Verschiebung des 3. Signals zu höheren Magnetfeldern größer als die Verschiebung des 2. zu geringeren Feldern. In Abb. 6 kommt dieser Sachverhalt im Vergleich zwischen Registrierkurven mit und ohne elektrischem Feld sehr deutlich zum Ausdruck. Bei einer Feldstärke von 13,7 kV/cm betrug z. B. die Verschiebung des 1. Crossings 0,8 Oe, die des 2. Crossings 9 Oe und die des 3. Crossings 19 Oe. Die für drei verschiedene Feldstärkewerte beobachteten Verschiebungen des 2. und 3. Levelcrossings konnten an Hand des in Abb. 7 dargestellten Dia-

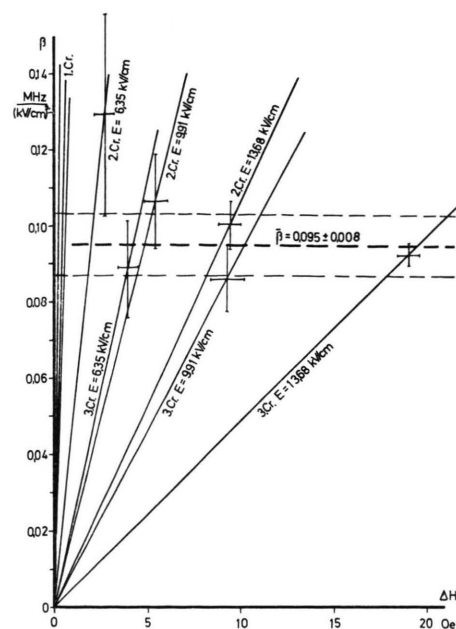


Abb. 7.  $\beta$  in Abhängigkeit von der Verschiebung  $\Delta H$  für die einzelnen Levelcrossings und die verschiedenen Werte der elektrischen Feldstärke. Die gezeichneten Geraden wurden aus der Diagonalisierung der Energiematrix unter Verwendung der bekannten Parameter  $A$ ,  $B$  und  $g_J$  berechnet.

gramms ausgewertet werden. Die dort eingezeichneten Geraden geben für jede bei der Messung eingestellte elektrische Feldstärke die Abhängigkeit der Verschiebungen  $\Delta H$  von  $\beta$  an. Sie wurden aus der Diagonalisierung der Energiematrix des Hamilton-Operators mit einer Rechenanlage gewonnen. Der gemessenen Verschiebung  $\Delta H$  wird über die zugehörige Gerade ein  $\beta$ -Wert zugeordnet. Als gewichteter Mittelwert für  $\beta$  im  $y^2 D_{3/2}$ -Term ergab sich

$$\beta = (+0,095 \pm 0,008) \text{ MHz}/(\text{kV}/\text{cm})^2$$

mit einem rein statistischen Fehler von 8%.

Hinzu tritt ein apparativer Fehler, der bei der Bestimmung der elektrischen Feldstärke entsteht. Das verwendete Röhrenvoltmeter (4%) in Verbindung mit einem Gleichspannungstastkopf (6%) führte zu einem Fehler von 10%. Der Gesamtfehler beträgt somit 18%, und das Endergebnis lautet:

$$\beta = (+0,095 \pm 0,017) \text{ MHz}/(\text{kV}/\text{cm})^2.$$

Abbildung 8 zeigt, wie sich die Magnetfeldwerte der Levelcrossings in Abhängigkeit von der angelegten elektrischen Feldstärke verschieben. Die ausgezogenen Kurven repräsentieren die gemessene Stark-Konstante, während die gestrichelten Linien den Fehlerbereich abgrenzen.

<sup>19</sup> A. HESE u. H.-P. WEISE, Z. Physik **215**, 95 [1968].

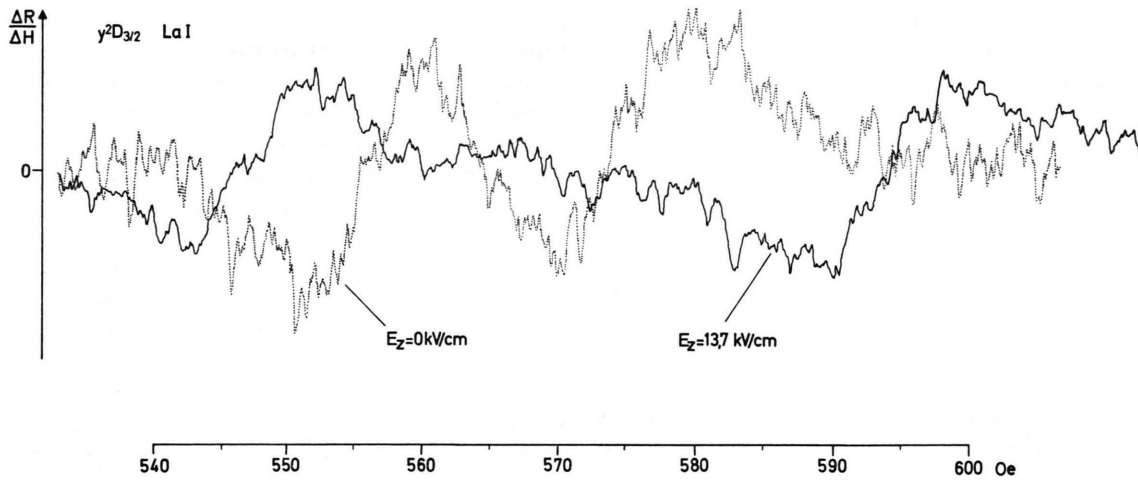


Abb. 6. Registrierte Levelcrossing-Signale des zweiten und dritten Crossings aus dem  $y^2D_{3/2}$ -Term einmal bei elektrischem Feld  $E_z = 0$  kV/cm und zum anderen bei  $E_z = 13,7$  kV/cm.

### Experimentelle Resultate für den $y^2D_{5/2}$ -Term

Für den  $y^2D_{5/2}$ -Term konnte eine große Zahl von Levelcrossing-Signalen zwischen 80 und 250 Oe beobachtet werden, jedoch nur das 1., 2. und 3. Signal sind ausreichend aufgelöst. Diese wurden daher zur Auswertung herangezogen. Alle weiteren Levelcrossings überlappen sich stark, wie es im unteren Teil von Abb. 9 zu erkennen ist. Für die Nulldurchgänge

ergaben sich die folgenden in Tab. 2 zusammengefaßten Werte:

|                  | 1. Crossing      | 2. Crossing       | 3. Crossing       |
|------------------|------------------|-------------------|-------------------|
| $(F, m; F', m')$ | $(3, -3; 2, -1)$ | $(4, -3; 3, -1)$  | $(4, -4; 3, -2)$  |
| $H_N$ [Oe]       | $80,05 \pm 0,24$ | $109,14 \pm 0,41$ | $123,65 \pm 0,48$ |

Tab. 2.

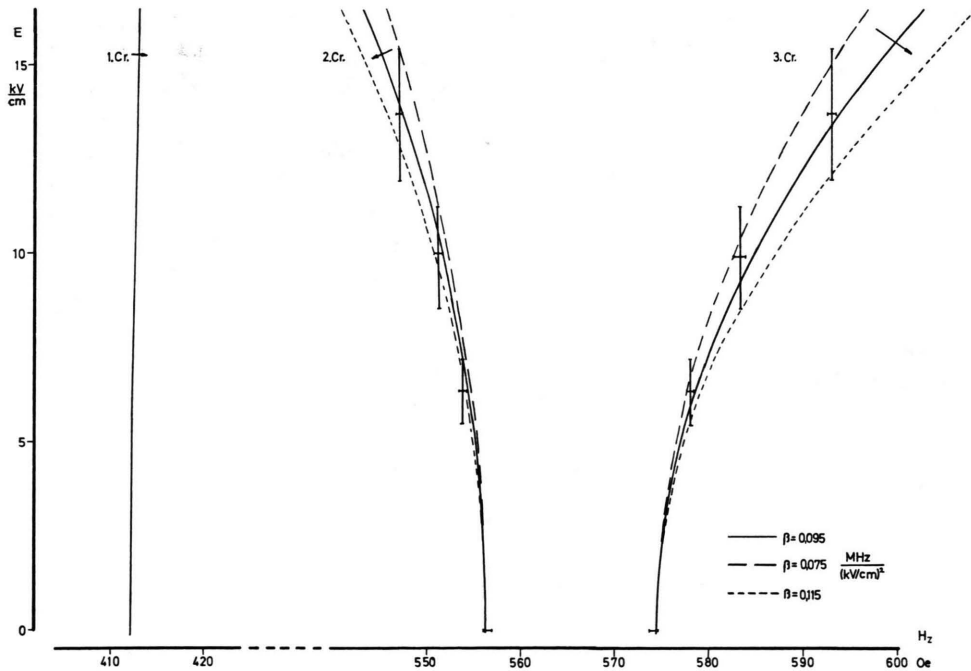


Abb. 8. Verschiebung der Magnetfeldwerte der Levelcrossings in Abhängigkeit von der elektrischen Feldstärke für den Meßwert von  $\beta$  (ausgezogene Linien).

Der angegebene Fehler ist der dreifache mittlere quadratische Fehler aus 32 Einzelmessungen. Die Überlappungskorrekturen für das 2. und 3. Levelcrossing wurden mit Hilfe einer Rechenmaschine zu  $-0,38$  Oe und  $+0,16$  Oe bestimmt. Analog zu dem für den  $y\ ^2D_{3/2}$ -Term beschriebenen Auswerteverfahren nehmen die Hfs-Wechselwirkungskonstanten folgende Werte an:

$$\begin{aligned} A &= (+63,41 \pm 0,21) \frac{g_J}{1,186} \text{ MHz}, \\ B &= (-13,3 \pm 1,4) \text{ MHz}, \\ B/A &= -0,210 \pm 0,020. \end{aligned}$$

Die Lebensdauer des  $y\ ^2D_{5/2}$ -Terms ergab sich aus der auf Modulationsfeldstärke Null extrapolierten Breite des freistehenden 1. Levelcrossings zu

$$\tau = (1,52 \pm 0,10) \cdot 10^{-8} \text{ s}.$$

Die Fehlerbereiche der beiden Lebensdauerwerte in den  $y\ ^2D$ -Termen überlappen sich.

Die Situation bei der zusätzlichen Einwirkung eines homogenen elektrischen Feldes ist jedoch anders als im  $y\ ^2D_{3/2}$ -Term. Wie Abb. 10 zeigt, wird das 1. Levelcrossing zu geringeren Feldstärken verschoben, während die beiden folgenden Levelcrossings sich aufeinander zubewegen. Bei weiterer Steigerung der Feldstärke bilden sie nur ein einziges Signal und haben schließlich bei 38,6 kV/cm ihre relativen Stellungen vertauscht. Die Stark-Konstante für den  $y\ ^2D_{5/2}$ -Term wurde allein aus der Verschiebung des 1. freistehenden Crossings ermittelt und mit der Feldstärke überprüft, bei der sich 2. und 3. Crossing vollständig überdecken:

$$\beta = (-0,0075 \pm 0,0025) \frac{\text{MHz}}{(\text{kV/cm})^2}.$$

Dieser Wert ist über zehnmal kleiner als derjenige für den  $y\ ^2D_{3/2}$ -Term und hat entgegengesetztes Vorzeichen<sup>20</sup>.

### Diskussion der Hfs-Wechselwirkung in den $5d6s6p\ y\ ^2D$ -Zuständen

Die Konfiguration  $5d6s6p$  wurde bereits in einer theoretischen Arbeit<sup>3</sup> insbesondere im Hinblick auf neugewonnene Hfs-Wechselwirkungskonstanten in den  $z\ ^2F_{5/2, 7/2}$ -Zuständen<sup>8</sup> und auch unter Verwen-

dung einiger vorläufiger Daten aus dieser Arbeit untersucht. Aus der Diagonalisierung der Energiematrix für die elektrostatische und Spin-Bahn-Wechselwirkung konnten unter Vernachlässigung der Konfigurationswechselwirkung mit den Termen der Konfiguration  $5d^26p$  für alle Terme mit  $J = 3/2, 5/2$  und  $7/2$  Eigenvektoren in intermediärer Kopplung gewonnen werden. Die Situation für Terme mit  $J = 3/2$  ist auf Grund der Konfigurationswechselwirkung mit dem  $6s^26p\ ^2P_{3/2}$ -Zustand (s. Abb. 1), wie bereits von RACAH<sup>21</sup> im Fall des Scandium I-Spektrums diskutiert, etwas komplizierter. Unter Berücksichtigung des  $6s^26p\ ^2P_{3/2}$ -Terms ergab sich aus der Diagonalisierung, daß entgegen der Klassifizierung von MOORE<sup>22</sup> der  $x\ ^2P$ -Zustand hauptsächlich zur Konfiguration  $6s^26p$  gehört, was in Parallele zum Sc I-Spektrum steht. Allerdings ist der Beitrag des  $6s^26p\ ^2P_{3/2}$ -Terms zum Eigenvektor des  $y\ ^2D_{3/2}$ -Terms von untergeordneter Bedeutung. Die nachfolgend aufgeführten Eigenvektoren der  $y\ ^2D$ -Terme wurden als Linearkombinationen aus Basisvektoren in LS-Kopplung unter Verwendung des sp-Parent-systems dargestellt:

$$\begin{aligned} |y\ ^2D_{5/2}\rangle &= 0,070 |(^3P)^4F\rangle + 0,211 |(^3P)^4D\rangle + 0,201 |(^3P)^4P\rangle \\ &\quad - 0,227 |(^3P)^2F\rangle + 0,292 |(^1P)^2F\rangle + 0,482 |(^3P)^2D\rangle \\ &\quad + 0,735 |(^1P)^2D\rangle, \\ |y\ ^2D_{3/2}\rangle &= 0,095 |(^3P)^4F\rangle + 0,420 |(^3P)^4D\rangle + 0,125 |(^3P)^4P\rangle \\ &\quad + 0,472 |(^3P)^2D\rangle + 0,699 |(^1P)^2D\rangle - 0,288 |(^3P)^2P\rangle \\ &\quad - 0,07 |(^1P)^2P\rangle. \end{aligned}$$

Jetzt sind die magnetische Dipol- und elektrische Quadrupolwechselwirkung zurückführbar auf die  $A$ - und  $B$ -Faktoren in LS-Kopplung. Es treten dabei Interferenz  $A$ - und  $B$ -Faktoren auf, die einen wesentlichen Einfluß auf die Hfs-Aufspaltung haben. Die weitere Reduktion der  $A$ - und  $B$ -Faktoren in LS-Kopplung auf Einelektronenmatrixelemente wird in einer Arbeit von ELBEL<sup>23</sup> und in der eingangs zitierten theoretischen Untersuchung<sup>3</sup> beschrieben. Mit den Einelektronenparametern  $a_{6s} = 2130$  MHz,  $a_1 = 215$  MHz,  $a_2 = 133$  MHz,  $b_1 = 140$  MHz und  $b_2 = 89$  MHz ergaben sich die in den Tab. 3 und 4 zusammengestellten Werte für  $A$ - und  $B$ -Faktoren in LS-, intermediärer und  $jj$ -Kopplung.

Da der Vergleich zwischen Theorie und Experiment nicht befriedigend ausfällt, bedarf die Konfiguration  $5d6s6p$  weiterer Untersuchungen insbe-

<sup>20</sup> Nur die Vorzeichen von  $B/A$  und  $\beta/A$  wurden durch die Experimente bestimmt, während die angegebenen Vorzeichen von  $A$ ,  $B$  und  $\beta$  auf Grund der Diskussion im folgenden festgelegt wurden.

<sup>21</sup> G. RACAH, Phys. Rev. **62**, 523 [1942].

<sup>22</sup> C. E. MOORE, Natl. Bur. Standards (U.S.), Circ. 467, Vol. III [1952].

<sup>23</sup> M. ELBEL, Ann. Phys., 7. Folge **13**, 217 [1964].



| Term            | LS  | interm. | $j j$ | exp.  |
|-----------------|-----|---------|-------|-------|
| $y \ ^2D_{3/2}$ | 107 | 277     | 285   | 143,2 |
| $y \ ^2D_{5/2}$ | 118 | 28      | -17   | 63,4  |

Tab. 3.

| Term            | LS  | interm. | $j j$ | exp.  |
|-----------------|-----|---------|-------|-------|
| $y \ ^2D_{3/2}$ | -14 | -10     | 35    | 1,27  |
| $y \ ^2D_{5/2}$ | -40 | -8      | 70    | -13,3 |

Tab. 4.

sondere unter Einschluß der Konfigurationswechselwirkung. Es wird lediglich die Größenordnung der Hfs-Wechselwirkung richtig beschrieben und eine sichere Vorzeichenfestlegung ermöglicht. Denn nach der Theorie ergibt sich ein positives Vorzeichen für den  $A$ -Faktor des  $y \ ^2D_{3/2}$ -Terms, was wegen  $B/A > 0$  und  $\beta/A > 0$  aus den Experimenten zu  $B > 0$  und  $\beta > 0$  führt und mit den Resultaten der Diskussion von  $\beta$  und  $\tau$  verträglich ist. Für den  $y \ ^2D_{5/2}$ -Term ergibt sich aus der Theorie  $A > 0$ ,  $B < 0$  und dies ist verträglich mit  $B/A < 0$  aus dem Experiment, jedoch führt  $A > 0$  wegen  $\beta/A < 0$  zu  $\beta < 0$ , was auch wegen der absoluten Größe von  $\beta$  im  $y \ ^2D_{5/2}$ -Term überrascht.

### Diskussion der Lebensdauern und Konstanten des quadratischen Stark-Effekts in den $y \ ^2D$ -Termen

Die angeregten  $y \ ^2D$ -Terme können in intermediärer Kopplung nicht nur in die  $5d6s^2 \ ^2D$ -Grundzustandsterme, sondern auch noch in die folgenden metastabilen Zustände zerfallen:

$$5d^2(a \ ^3F)6s \ a \ ^4F, \ 5d^2(a \ ^3F)6s \ a \ ^2F, \ 5d^2(a \ ^3P)6s \ a \ ^4P, \\ 5d^2(b \ ^1D)6s \ b \ ^2D \text{ und } 5d^2(a \ ^3P)6s \ a \ ^2P.$$

Für die Lebensdauer gilt daher

$$\tau_J = 1 / \sum_i A_{JJ_i},$$

wobei über alle oben angegebenen Endzustände zu summieren ist.  $A_{JJ_i}$  sind die spontanen Übergangswahrscheinlichkeiten, die in folgendem Zusammenhang mit der absoluten Linienstärke  $S_{JJ_i}$  stehen:

$$A_{JJ_i} = \frac{1}{2} \frac{64 \pi^4}{J_i + 1} \frac{1}{3 h \lambda^3} S_{JJ_i}, \\ S_{JJ_i} = |\langle \gamma J || \text{er} || \gamma_i J_i \rangle|^2.$$

Zunächst wurden die von Corliss und Bozman gemessenen und im NBS-Monograph 53 zusammengestellten Übergangswahrscheinlichkeiten benutzt, um die Lebensdauern der  $y \ ^2D$ -Terme zu berechnen und mit den Meßwerten aus dieser Arbeit zu vergleichen.

| Term            | Diese Arbeit                       | CORLISS u. BOZMAN              | BATES u. DAMGAARD             |
|-----------------|------------------------------------|--------------------------------|-------------------------------|
| $y \ ^2D_{3/2}$ | $1,42(9) \cdot 10^{-8} \text{ s}$  | $6,5 \cdot 10^{-8} \text{ s}$  | $1,7 \cdot 10^{-8} \text{ s}$ |
| $y \ ^2D_{5/2}$ | $1,52(10) \cdot 10^{-8} \text{ s}$ | $10,4 \cdot 10^{-8} \text{ s}$ | $1,4 \cdot 10^{-8} \text{ s}$ |

Tab. 5.

Wie Tab. 5 zeigt, sind die Lebensdauern nach NBS 53 um den Faktor 5 bzw. 7 zu lang, was auch nicht dadurch hinreichend erklärt werden kann, daß dort die Übergänge zu den  $5d^2 6s \ ^2D$ - und  $^2P$ -Termen fehlen. In Spalte 4 von Tab. 5 sind nach der Näherungsmethode von Bates und Damgaard unter Verwendung der Wellenfunktionen in intermediärer Kopplung berechnete Lebensdauerwerte aufgeführt, wobei die Übergänge zu den metastabilen Termen vernachlässigt wurden. Diese betragen jedoch nur 15–25% von den Übergängen zum Grundzustand, wenn die  $A$ -Werte von Corliss und Bozman relativ zueinander richtig sind. Die Bates und Damgaard-Näherung beschreibt die Lebensdauer der  $y \ ^2D$ -Terme recht gut. Die Anwendung der Bates und Damgaard-Näherung auf die Stark-Konstanten  $\beta$  der  $y \ ^2D$ -Terme führt zu den in Tab. 6 zusammengestellten Werten.

Es zeigt sich, daß die Stark-Konstanten nach Größe und Vorzeichen unter so vereinfachten Annahmen nicht richtig gedeutet werden können. Eine genauere theoretische Analyse soll in Zusammenhang mit weiteren Stark-Effekt-Experimenten durchgeführt werden.

| Term            | Diese Arbeit                                      | BATES u. DAMGAARD                            |
|-----------------|---|--|
| $y \ ^2D_{3/2}$ | $+0,095(17) \frac{\text{MHz}}{(\text{kV/cm})^2}$  | $+0,007 \frac{\text{MHz}}{(\text{kV/cm})^2}$ |
| $y \ ^2D_{5/2}$ | $-0,0075(25) \frac{\text{MHz}}{(\text{kV/cm})^2}$ | $+0,003 \frac{\text{MHz}}{(\text{kV/cm})^2}$ |

Tab. 6.

Herrn Professor Dr. H. BUCKA danken wir für sein stets förderndes Interesse an dieser Arbeit. Die Deutsche Forschungsgemeinschaft stellte dankenswerterweise einige Meßgeräte zur Verfügung.