

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

W. DRTEL

I. Physikalisches Institut der Justus-Liebig-Universität Gießen

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

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

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

Das Ionenstoßleuchten atomarer Gase ist unter bestimmten Anregungs- und Beobachtungsbedingungen teilweise polarisiert¹. Die Ionenstoßrichtung stellt eine Vorzugsrichtung der Anregung dar und führt zu einer Ausrichtung (alignment) im angeregten Zustand. Aus dem depolarisierenden Einfluß eines magnetischen Feldes, HANLE-Effekt² (zero field level-crossing), ist bei bekanntem Landé-Faktor die Relaxationszeit des angeregten Atomzustandes bestimmbar. Hanle-Effekt-Messungen wurden bisher im wesentlichen nur bei optischer Anregung und bei Elektronenstoßanregung³ durchgeführt. Viele Zustände können mit optischer Anregung, bedingt durch die Auswahlregeln, nicht direkt besetzt werden. Die Stoßanregung, die an diese Auswahlregeln nicht gebunden ist, ermöglicht es, solche Zustände direkt anzuregen und zu untersuchen. Zur Messung kleiner Lebensdauern ($\tau \sim 1$ ns) erfordert diese Methode Magnetfeldstärken bis zu 150 Gauß. Magnetische Feldstärken dieser Größenordnung haben bei einer Elektronenstoßanregung mit einer Anregungsenergie von ~ 50 eV wegen des geringen Krümmungsradius eines anregenden Elektronenstrahles jedoch den Verlust der Vorzugsrichtung der Anregung zur Folge. Dieser Einfluß wird durch die Verwendung der Ionenstoßanregung vermieden.

* Auszug aus D 26.

¹ F. J. DE HEER, Advan. Atomic and Molecular Physics, Vol. 2, Academic Press, New York 1966, S. 327.² W. HANLE, Z. Phys. 30, 93 (1924); Ergeb. Exakt. Naturw. 4, 214 (1925). — A. C. MITCHELL u. M. W. ZEMANSKY, Resonance Radiation and Excited Atoms, Cambridge University Press 1934, Chapt. 5.

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

1. Theorie

Der Relaxationsprozeß angeregter Zustände kann mit Hilfe zweier Relaxationszeiten $\tau^{(1)}$ und $\tau^{(2)}$, denen eine einfache physikalische Bedeutung zukommt, beschrieben werden⁴. Während $\tau^{(1)}$ die Relaxationszeit der Orientierung darstellt, ist $\tau^{(2)}$ als die der Ausrichtung eines angeregten Zustandes zu bezeichnen. Die Anregung durch Elektronen- bzw. Ionenstoß führt zu einer solchen Ausrichtung im angeregten Zustand, so daß aus Hanle-Effekt-Messungen die Relaxationszeit $\tau^{(2)}$ der Ausrichtung bestimmt werden kann.

Die Form des Hanle-Effekt-Signales⁵ (zero field level-crossing) wurde von einigen Autoren aus der Breit-Formel abgeleitet. Entsprechend der hier verwendeten geometrischen Anordnung (Abb. 1) mit

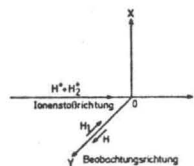
³ H. H. STROKE, Physics Today 19, 55 (1966).⁴ O. NÉDELIC, Thèses, l'Université de Grenoble, Mai 1966.⁵ G. BREIT, Rev. Mod. Phys. 5, 91 (1933). — P. FRANKEN, Phys. Rev. 121, 508 (1961). — M. E. ROSE u. R. L. CARAVILLANO, Phys. Rev. 122, 1185 (1961). — W. HAPPER u. E. B. SALOMAN, Phys. Rev. 144, 7 (1966); 160, 23 (1967).

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

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

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

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

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

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

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

Die Druckabhängigkeit dieser reziproken Relaxationszeit kann in der folgenden Form dargestellt werden⁶:

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

und beschreibt im zweiten Term der rechten Seite $\sum_i x_i \alpha_i^{(2)} \Gamma_i$ den Einfluß der kohärenten Vielfachstreuung⁷ im dritten Term $n(v) \bar{\sigma}^{(2)}$ den der Zer-

störung der Ausrichtung durch Stöße mit anderen Atomen. Der Grenzwert für kleine Gasdichten ist gleich der natürlichen Breite Γ des angeregten Zustandes und gleich der reziproken natürlichen Lebensdauer τ . Der Index i bezeichnet den i -ten Übergang aus dem angeregten Zustand, während Γ_i / Γ das Verzweigungsverhältnis angibt. Der Faktor $\alpha_i^{(2)}$ wurde von SALOMAN und HAPPER⁸ tabelliert. Die Photoneinfangwahrscheinlichkeit x_i , eine Funktion der Gasdichte, ist für die Druckabhängigkeit der kohärenten Vielfachstreuung verantwortlich. Die Anzahl der Atome/cm³ ist mit n bezeichnet, $\langle v \rangle = 4(kT/\pi m)^{1/2}$ ist die mittlere relative Geschwindigkeit einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung⁸ und $\bar{\sigma}^{(2)}$ der mittlere Wirkungsquerschnitt für die Zerstörung der Ausrichtung.

Theoretische Untersuchungen zur kohärenten Vielfachstreuung durch eine ebene Gasschicht wurden 1959 von BARRAT⁷ durchgeführt. Mit der Annahme einer für alle Atome gleichen thermischen Geschwindigkeit v_0 ist die Druckabhängigkeit durch

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

gegeben. g_1 und g_2 sind die statistischen Gewichte des unteren und oberen Zustandes, $\lambda_i = 2\pi/k_i$ ist die Wellenlänge des Überganges, v_0 die Geschwindigkeit der Atome, L der effektive Radius (charakteristische Gefäßdimension) des Stoßraumes und n_i die Zahl der Atome pro cm³ im Zustand i .

Eine Erweiterung der Theorie gelang D'YAKONOV und PEREL⁷, indem sie die Annahme einer gleichen Geschwindigkeit v_0 aller Atome in der Barratschen Theorie durch die Annahme einer Maxwell'schen Geschwindigkeitsverteilung ersetzten. Diese Untersuchung führte für den Fall, daß der angeregte Zustand einen Gesamtdrehimpuls $j_1 = 1$ und der Grundzustand $j_0 = 0$ besitzt, zu dem folgenden Ergebnis

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

mit $l_0 = 8\pi^{1/2} v / (3n\lambda^3 \Gamma)$ für $L \gg l_0$.

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

⁶ Für eine Maxwell-Boltzmann-Verteilung gilt:

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

⁷ M. I. D'YAKONOV u. V. I. PEREL, Soviet Phys.-JETP 21, 227 (1965).⁸ D. A. LANDMAN, Phys. Rev. 173, 33 (1968).⁷ J. P. BARRAT, Thèses, l'Université de Paris, März 1959. — M. I. D'YAKONOV u. V. I. PEREL, Soviet Phys.-JETP 20, 997 (1965).

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

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

2. Versuchsanordnung

VAN ECK, DE HEER und VAN DEN BOS¹⁰ sowie SCHARMANN und SCHARTNER¹¹ untersuchten in Analogie zu den Experimenten von SKINNER¹² et al. den Polarisationsgrad des Stoßleuchtens von Helium in Abhängigkeit von der Energie (5 keV – 1 MeV) stoßender H-Atome, H⁺, H₂⁺ und H₃⁺-Ionen. Die gemessenen Abhängigkeiten der Polarisationsgrade von der Stoßenergie der H⁺ und H₂⁺-Ionen zeigen für die verschiedenen Übergänge des Helium-Singulett-Spektrums ein Maximum des Polarisationsgrades zwischen 10 und 20 keV. Mit steigender Stoßenergie nimmt der Polarisationsgrad ab und nähert sich für Energien $E > 1$ MeV einem negativen Grenzwert¹³. Eine Betrachtung der Anregungsquerschnitte zeigt, daß die Maxima der Polarisationsgrade wie z. B. bei der Protonenstoßanregung schon bei Energien unterhalb der der maximalen Anregungsquerschnitte erreicht werden. Aus zahlreichen Messungen ist bekannt, daß der Polarisationsgrad unterhalb eines Grenzdrukkes p_g vom Druck des Gases unabhängig ist. Oberhalb dieses Grenzdrukkes nimmt der Polarisationsgrad mit steigendem Druck ab. Die

Auswahl der Anregungsenergie, der Stoßenergie der H⁺ und H₂⁺-Ionen, zu 15 keV wurde der energetischen Lage des Polarisationsgradmaximums entsprechend getroffen.

2.1. Ionenquelle und Nachbeschleunigung

Die Wasserstoffionen wurden in einer Hohlkathodenentladung (Abb. 2) bei einem Druck von ungefähr 10^{-3} Torr erzeugt¹⁴. Durch ein Magnetfeld parallel zur Achse der zylindrischen Anode wurde die Ionisierungsdichte erhöht. Die Betriebsdaten der Entladung waren: Entladungsspannung $U = 5$ kV, Entladungsstrom $I = 20$ mA. Das Ionengemisch, 50% H⁺ und 50% H₂⁺-Ionen, konnte durch eine Öffnung ($\phi = 4$ mm) in der Mantelfläche des Wolfram-Anodenzylinders aus dem Entladungsplasma senkrecht zur Zylinderachse mit Hilfe einer Extraktionsspannung von 4 kV abgesaugt und durch ein Dreielektrodenliniensystem fokussiert werden. Die Anode der Entladung war auf ein Potential von +15 kV gegen Erdpotential gelegt.

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

2.2. Druckstufe

Um die Einflüsse des Restgases in der Nachbeschleunigungsstrecke auf den Ionenstrahl, wie z. B. die Defokussierung durch Streuung, gering zu halten, mußte ein Restgasdruck von $p_R < 2 \cdot 10^{-3}$ Torr durch Öl-Diffusionspumpen (350 l/sec) aufrechterhalten werden. Zur Untersuchung des Stoßleuchtens war dagegen ein maximaler Druck von $p = 5 \cdot 10^{-3}$ Torr in der Stoßkammer erwünscht. Um dieses Druckgefälle zwischen der Nachbeschleunigungsstrecke und dem Stoßraum aufrechterhalten zu können, wurde dazwischen eine Druckstufe eingebaut.

2.3. Stoßraum

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

¹⁰ J. VAN ECK, F. J. DE HEER u. J. KISTEMAKER, Physica 30, 1171 [1964]. — J. VAN DEN BOS, Thesis, Universität Amsterdam 1967.
¹¹ A. SCHARMANN u. K.-H. SCHARTNER, Phys. Letters 26 A, 51 [1967]; 27 A, 43 [1968].

¹² H. W. B. SKINNER, Proc. Roy. Soc. London 112 A, 642 [1926]. — H. W. B. SKINNER u. E. T. S. APLEYARD, Proc. Roy. Soc. London 117 A, 224 [1927].
¹³ I. C. PFEIFFER u. M. I. SUTTON, Phil. Trans. Roy. Soc. London 231, 113 [1953]. — A. SCHARMANN u. K.-H. SCHARTNER, Z. Phys. 219, 55 [1969].
¹⁴ C. F. BARNETT et al., Rev. Sci. Instr. 24, 394 [1953].

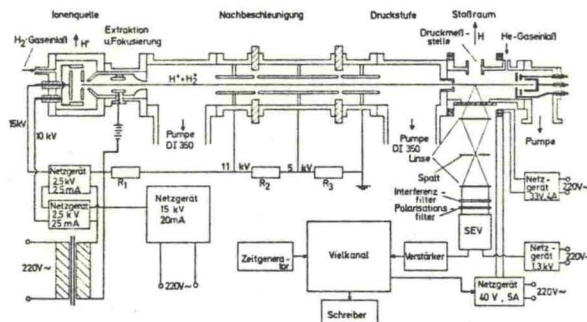


Abb. 2. Versuchsanordnung (Pumpstützen um 90° gedreht).

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

2.4. Magnetfeld und Nachweisoptik

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

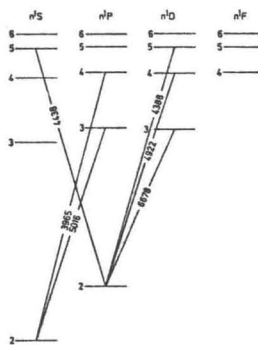
zur Beobachtungsrichtung erzeugt. In einer entsprechenden Anordnung wurden außerdem das Erdmagnetfeld und das störende Streufeld des Ionenquellennagneten auf 50 mG kompensiert.

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

Typ					H.W.	λ_{max}
5'S-2'P	B 11	5'S-2'P 4438 Å 55% 57%	5'D-2'P 4388 Å < 1% < 1%	4'D-2'P 4471 Å 1% 1%	9 Å	4438 Å (BA)
3'P-2'S	B 11	4'D-2'P 4922 Å	3'P-2'S 5016 Å	4'S-2'P 5048 Å	12 Å	5019 Å (BA)
4'P-2'S	B 11	4'P-2'S 3965 Å 29% 26,5%	5'D-2'P 4026 Å < 1%	3'P-2'S 3888 Å < 1% < 1%	20 Å	3965 Å (BA)
3'D-2'P	B 10	3'D-2'P 6678 Å 52%	3'S-2'P 7065 Å < 1%	3'S-2'P 7281 Å < 1% < 1%	70 Å	
4'D-2'P	B 10	4'D-2'P 4922 Å 71%	3'P-2'S 5016 Å < 0,4% < 1%	4'S-2'P 5048 Å < 1% < 1%	39 Å	
5'D-2'P	B 11	5'D-2'P 4388 Å	5'S-2'P 4438 Å	4'D-2'P 4471 Å	13,5 Å	4392 Å (BA)
		T 54,5% T _{BA} 48%	< 1% < 1%	< 5% < 4%		

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

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



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

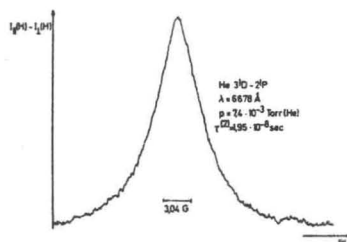


Abb. 8. Beobachtetes Hanle-Effekt-Resonanzsignal des durch H^+ - und H_2^+ -Ionenstoß angeregten $He\ 3^1D$ -Zustandes. [Ordinate: $I_{||}(H) - I_{\perp}(H)$; Abszisse: Magnetfeld H .]

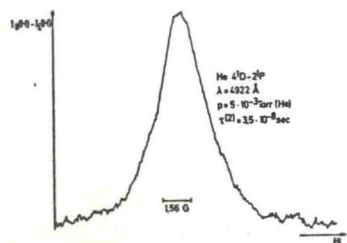


Abb. 9. Beobachtetes Hanle-Effekt-Resonanzsignal des durch H^+ - und H_2^+ -Ionenstoß angeregten $He\ 4^1D$ -Zustandes. [Ordinate: $I_{||}(H) - I_{\perp}(H)$; Abszisse: Magnetfeld H .]

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

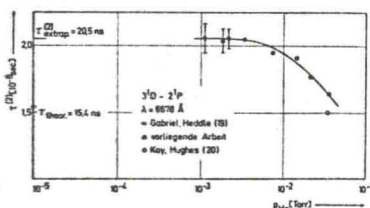


Abb. 10. Gemessene Druckabhängigkeit der Relaxationszeit $\tau^{(2)}$ des durch H^+ - und H_2^+ -Ionenstoß angeregten $He\ 3^1D$ -Zustandes.

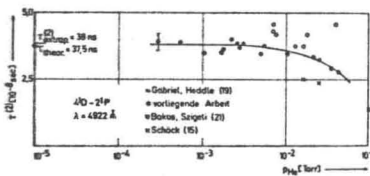


Abb. 11. Gemessene Druckabhängigkeit der Relaxationszeit $\tau^{(2)}$ des durch H^+ - und H_2^+ -Ionenstoß angeregten $He\ 4^1D$ -Zustandes.

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

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

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

19 J. BAKOS u. J. SZIGETI, Acta Phys. Hung. 21, 149 [1966].
22 A. FAURE, O. NÉDÉLEC u. J.-C. PEBAY-PEYROULA, C. R. Acad. Sci. Paris 256, 5088 [1963].

23 R. DECOMPS, J.-C. PEBAY-PEYROULA u. J. BROSEL, C. R. Acad. Sci. Paris 251, 941 [1960].
24 R. G. FOWLER, University of Oklahoma, private Mitteilung.

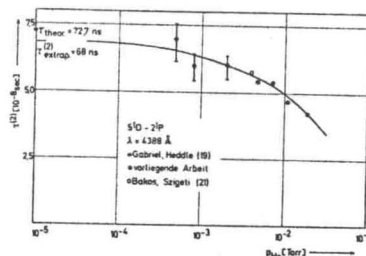


Abb. 12. Gemessene Druckabhängigkeit der Relaxationszeit $\tau^{(2)}$ des durch H^+ - und H_2^+ -Ionenstoß angeregten $He\ 5^1D$ -Zustandes.

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

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

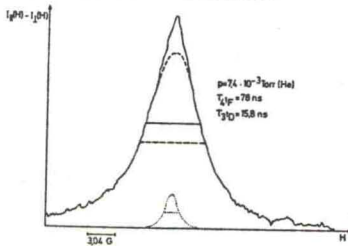


Abb. 13. Additive Überlagerung zweier Lorentz-Kurven zur Anpassung an das gemessene Hanle-Effekt-Resonanzsignal des $He\ 3^1D$ -Zustandes [Ordinate: $I_{||}(H) - I_{\perp}(H)$; Abszisse: Magnetfeld H].

Mit der Annahme, daß die Besetzung im wesentlichen durch einen Kaskadenübergang aus einem höheren Zustand erfolgt und die Relaxationszeit dieses Zustandes groß gegen die des zu untersuchenden Zustandes ist, wird die größere Relaxationszeit des höheren Zustandes wirksam. Für den vorliegenden Fall der Resonanzkurve des 3^1D -Zustandes ergaben sich aus der Anpassung zwei Relaxationszeiten $\tau_1^{(2)} = 15,8$ und $\tau_2^{(2)} = 78$ ns, wobei die erste dem 3^1D - und die zweite dem 4^1F -Zustand zugeordnet wurde. Ein solcher Einfluß auf die natürlichen Lebensdauern der 4^1D - und 5^1D -Zustände war nicht erkennbar und läßt sich auf die geringeren Anregungswahrscheinlichkeiten der höheren Zustände zurückführen.

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

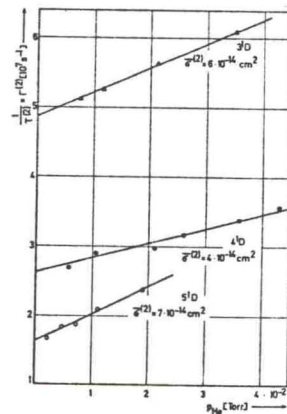


Abb. 14. Druckabhängigkeit der reziproken Relaxationszeiten $1/\tau^{(2)} = f^{(2)}$ der $He\ 3^1D$, 4^1D - und 5^1D -Zustände im Druckbereich von $1 \cdot 10^{-5}$ bis $4 \cdot 10^{-2}$ Torr zur Bestimmung der mittleren Wirkungsquerschnitte für die Zerströmung der Ausrichtung (alignment).

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

	$\bar{\sigma}^{(2)}$ (cm ²)	$\bar{\sigma}^{(2)}$ (cm ²) ²⁵	$\bar{\sigma}$ (cm ²) ²⁴
3 ¹ D	6 · 10 ⁻¹⁴		
4 ¹ D	4 · 10 ⁻¹⁴	4 · 10 ⁻¹⁴	
5 ¹ D	7 · 10 ⁻¹⁴		
6 ¹ D			5,7 · 10 ⁻¹⁴
7 ¹ D			8,5 · 10 ⁻¹⁴

Tab. 4.

Diese Wirkungsquerschnitte sind verhältnismäßig groß, aber mit den für höhere n^1 D-Zustände bestimmten Wirkungsquerschnitten $\bar{\sigma}$ für den „desexci-

tation“-Prozeß²⁴ angeregter Zustände durch Stöße mit anderen Atomen in der Größenordnung vergleichbar. Auch hier ist der oben diskutierte Einfluß des Kaskadenüberganges aus dem 4¹F-Zustand deutlich erkennbar. Der in Tab. 4 angegebene Wirkungsquerschnitt ist für den 3¹D-Zustand als Summe der Wirkungsquerschnitte des 3¹D- und 4¹F-Zustandes mit verschiedenen Gewichten anzusehen.

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

²⁵ W. JANKE, Universität Gießen, private Mitteilung.

Zufallswege und Reaktionen atomarer Gitterfehler in Modellkristallen

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

HELMUT MEHRER

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

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

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

Überschüssige atomare Gitterfehler können aus einem Kristallgitter entweder durch gegenseitige Rekombination oder durch Annihilation an einer Senke verschwinden. In jedem Fall spielt für die physikalische Interpretation der zeitliche Verlauf der Reaktion, die sogen. Erholungskinetik, eine entscheidende Rolle. Üblicherweise¹ wird zu ihrer Deutung eine der beiden folgenden Näherungen herangezogen:

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

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

(ii) Die *Diffusionstheorie* arbeitet mit ortsabhängigen Konzentrationen. HAM² untersucht mit Hilfe der Diffusionsgleichung die Ausscheidung aus einer übersättigten Lösung an Senken. FLYNN³ diskutiert

den Übergang vom diskontinuierlichen Gitter zum Kontinuum für diesen Fall. Er kommt zu dem Schluß, daß die Diffusionsgleichung mit Ausnahme der Umgebung sehr kleiner Senken gültig sein sollte. Die WAITESche Theorie⁴ gibt eine Beschreibung einer diffusionsgehennten, bimolekularen Reaktion in einem Kontinuum.

Sowohl die Hamsche als auch die Waitesche Theorie sind Kontinuums-theorien. Bei Fehlstellenreaktionen, die sich in atomaren Dimensionen abspielen, kann aber sehr wohl die Kinematik der Sprünge im Gitter von Bedeutung sein. Der Einfluß von Fluktuationen der Defektverteilung wird ebenfalls nicht erfaßt. Hinzu kommt, daß eine Verallgemeinerung auf kompliziertere Fälle, wie z. B. die Berücksichtigung von Doppelleerstellen in den Hamschen Theorie oder derjenigen einer Wechselwirkung der Reaktionspartner in der Waiteschen Theorie, zwar prinzipiell möglich ist, daß sie aber auf sehr unhandliche Gleichungen führt, deren Lösung nur in ganz speziellen Fällen⁵ gelingt.

Eine vorteilhafte Möglichkeit, die skizzierten Schwierigkeiten der „klassischen“ Theorien zu überwinden, bietet die Simulation von Zufallswegen und Reaktionen von Punktfehlern mit Hilfe eines Computers. Das Simulationsverfahren erlaubt eine exakte Beschreibung der Zufallswege in einem Gitter. Fluktuationen der Defektverteilung werden automatisch berücksichtigt. Schließlich ist das Verfahren im Prinzip auf beliebig komplizierte Fälle anwendbar. Seine Grenzen sind allein durch die Rechengeschwindigkeit und Speicherkapazität des verfügbaren Computers bestimmt.

KRIEMENT⁶ hat erstmals mit einer ähnlichen Methode Ausscheidungsvorgänge von Gitterfehlern in zweidimensionalen Gittern von 625 Gitterplätzen verfolgt. Realistische Verhältnisse erhält man aber erst in dreidimensionalen Gittern, da Arbeiten von VINEYARD⁷, MONTROLL⁸ sowie POLYA⁹ zeigen, daß wichtige Eigenschaften des Zufallsweges in einem Gitter von dessen Dimensionalität abhängen. Reaktionen von Gitterlücken in einem dreidimensionalen Gitter von 32 000 Gitterpunkten wurden von SCHOLZ¹⁰ für zwei spezielle Modelle untersucht.

In der vorliegenden Arbeit (Teil I) wird die Ausscheidung leerer Gitterplätze einer Senke behandelt.

Die Rekombination von Zwischengitteratomen und Leerstellen ist Gegenstand der folgenden Arbeit (Teil II) in diesem Heft.

1. Die Simulationsmethode

1.1 Symmetrische und asymmetrische Zufallswege

Die Bewegung einer Fehlstelle ist eine Irrfahrt in einem dreidimensionalen Gitter (Brownsche Bewegung); wir werden im folgenden von einem Zufallsweg sprechen. Sein geometrisches Abbild ist ein räumlicher Polygonzug (vgl. Abb. 1). Dieser setzt sich zusammen aus den Sprungvektoren $s[h_i]$. Im allgemeinen kann ein Gitterfehler nur Sprünge zu den nächsten Nachbarpositionen ausführen. Es exi-

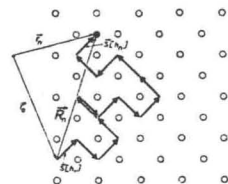


Abb. 1. Zufallsweg eines Zwischengitteratoms in einem zweidimensionalen Gitter.

tiert daher nur eine endliche Anzahl H_0 verschiedener Sprungvektoren. Jedem von ihnen ordnen wir eine ganze Zahl h_i ($h_i = 1, 2, \dots, H_0 - 1, H_0$) zu. Für einige Gitterfehler sind die Sprungvektoren in Tab. 1 für Sprünge auf nächste Nachbarplätze zusammengestellt.

Fehlstelle	A	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	H_0
L ₁ und Z	s_x	1	1	0	0	1	1	0	0	1	1	1	1	1
im kfz	s_y	0	0	1	1	0	0	1	1	1	1	1	1	12
Gitter	s_z	1	1	1	1	1	1	1	0	0	0	0	0	
L ₁ im	s_x	2	2	0	0	0	0							
kpr Gitter	s_y	0	0	2	2	0	0							6
	s_z	0	0	0	0	2								
L ₁ im	s_x	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	
krz Gitter	s_y	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	8
	s_z	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	

Tab. 1. Sprungvektoren für verschiedene Fehlstellen in Ebenen $a/2$ und ihre Zuordnung zu Zufallszahlen.

* Dissertation, Teil I, Universität Stuttgart 1968.

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

² F. S. HAM, J. Phys. Chem. Solids 6, 335 [1958].

³ C. P. FLYNN, Phys. Rev. 133, A 587 [1964].

⁴ T. R. WAITE, Phys. Rev. 107, 463, 471 [1957]; J. Chem. Phys. 28, 103 [1958].

⁵ W. FRANK, Diplomarbeit, Universität Stuttgart 1963.

⁶ O. KRIEMENT, Phys. Kondens. Materie 1, 326 [1963].

⁷ G. H. VINEYARD, J. Math. Phys. 4, 1141 [1963].

⁸ E. W. MONTROLL, J. Soc. Indust. Appl. Math. 4, 241 [1956].

⁹ G. POLYA, Math. Ann. 84, 149 [1921].

¹⁰ A. SCHOLZ, Phys. Status Solidi 14, 169 [1966].