

Übertragung von Polarisation bei sensibilisierenden Stößen angeregter Natriumatome

II. Im starken Magnetfeld*

W. B. SCHNEIDER

Physikalisches Institut der Universität Marburg (Lahn)

Eingegangen am 23. September 1971

Polarization Transfer in Sensitizing Collisions of Excited Atoms

II. In a Strong Magnetic Field

The transfer of magnetic polarization between the levels ${}^2P_{1/2}$ and ${}^2P_{3/2}$ in sensitizing collisions of excited sodium atoms and noble-gas atoms has been studied. Deviating from a previous study on this topic the nuclear spin was now decoupled by means of a strong magnetic field. As a result more $D_2\sigma^-$ -quanta could be detected in the sensitized fluorescence following an excitation with $D_1\sigma^+$ -light. From the measurement of the fluorescence intensities $I_{D_1\sigma^+}$ and $I_{D_2\sigma^+}$, cross-sections peculiar to polarization transfer could be derived. In the case of He and Ne these cross-sections together with the cross-sections of normal sensitizing collisions could be traced back to Grawert's parameter a_1 and a_2 hence confirming the assumption of the spin being "at rest" during the collision.

1. Einleitung

Im vorliegenden Fall befinden sich Natriumatome in einem Magnetfeld, das für die Entkopplung des Hüllen- und des Kerndrehimpulses im $\text{Na-}3p^2P$ -Zustand ausreicht (900 Oe). (Über den Fall des schwachen Magnetfeldes wurde im ersten Teil¹ berichtet.) Jetzt ist das einfachere Feinstrukturzeemantermschema gültig und es lassen sich leichter die Gesetzmäßigkeiten der Durchmischung der Zeemanzustände durch Edelgasstöße untersuchen. Diese Untersuchung ist von Interesse, da hiermit die von verschiedenen Autoren²⁻⁷ vorgeschlagenen Stoßmodelle für diesen Stoßvorgang getestet werden können.

* Teilweise vorgetragen auf der Frühjahrstagung der DPG, Freudenstadt 1970.
Auszug aus einer Marburger Dissertation 1971.

1 Elbel, M., Schneider, W.: Z. Physik **241**, 244 (1971).

2 Elbel, M., Naumann, F.: Z. Physik **204**, 501 (1967); — Erratum. Z. Physik **208**, 104 (1968).

3 Franz, F. A., Franz, J. R.: Phys. Rev. **148**, 82 (1966).

4 Franz, F. A., Shuey, R. T., Leutert, G.: Helv. Phys. Acta **40**, 778 (1967).

5 Elbel, M., Schneider, W.: Proceeding of the OPaLS Conference, Warsaw (1968).

6 Elbel, M.: Canad. J. Phys. **48**, 3047 (1970).

7 Grawert, G.: Z. Physik **225**, 283 (1969).

Edelgasstöße geben bekanntlich u. a. zu folgenden am Fluoreszenzlicht nachweisbaren Phänomene Anlaß:

1. Sensibilisierte Fluoreszenz^{9, 8}.
2. Polarisationstransfer^{1, 10}.
3. Relaxation.
4. Depolarisation des Resonanzfluoreszenzlichts¹¹.

Diese Phänomene führen zu unabhängigen Verfahren zur Bestimmung von Stoßwirkungsquerschnitten (WQ), die jeweils auf das Phänomen selber bezogen sind. Wir nennen sie: σ_{sens} (WQ für die sensibilisierte Fluoreszenz), σ_{poltrans} (WQ für den Polarisationstransfer), σ_{relax} (WQ für die Relaxation) und σ_{depol} (WQ für die Depolarisation des Resonanzfluoreszenzlichts). Die Messung dieser Wirkungsquerschnitte erlaubt uns dann, die von Grawert⁷ zur Beschreibung des vorliegenden Stoßproblems angegebenen Parameter a_1 und a_2 , deren Größe noch offengelassen ist, zu bestimmen.

2. Methode

Zur Messung dieser Wirkungsquerschnitte wird nur einer der beiden Feinstrukturterme optisch bevölkert. Die zum Aufbau einer Polarisation in einem Feinstrukturzustand notwendige ungleiche Anregung seiner Zeemanterme wird durch Einstrahlen von zirkularpolarisiertem Licht einer D -Linie erreicht. Im ${}^2P_{1/2}$ -Zustand ist nur ein Orientierungsgrad eins – d. h. nur eine Vektorpolarisation – möglich. Durch Stöße in einem Gas mit isotroper Geschwindigkeitsverteilung kann daher nach Dyakonov und Perel¹² im ${}^2P_{3/2}$ -Zustand vom ${}^2P_{1/2}$ -Zustand aus nur eine Vektorpolarisation aufgebaut werden. Insgesamt kommt somit bei einer Stoßübertragung von Tensorpolarisation zwischen den 2P -Feinstrukturzuständen nur die Vektorpolarisation in Frage.

Die zeitliche Änderung der Gesamtbesetzung N_J und der magnetischen Vektorpolarisation M_J/N_J des jeweils nur durch Stöße besetzten $3p\ {}^2P$ -Feinstrukturzustands wird durch folgende Bilanzgleichungen beschrieben (N_J entspricht dem Ausdruck $\sum N_{Jm_J}$ und M_J dem Ausdruck $\sum m_J N_{Jm_J}$; N_{Jm_J} ist die Besetzungszahl des bezeichneten Zeemanzustands):

$$\frac{dN_J}{dt} = -\frac{N_J}{\tau} - N' v_r (\sigma_{\text{sens}}(J \rightarrow J') N_J - \sigma_{\text{sens}}(J' \rightarrow J) N_{J'}), \quad (1)$$

$$\frac{dM_J}{dt} = -\frac{M_J}{\tau} - N' v_r (\sigma_{\text{relax}}(J) M_J - \sigma_{\text{poltrans}}(J' \rightarrow J) M_{J'}). \quad (2)$$

8 Wood, R. W.: Z. Physik **13**, 353 (1912). — Wood, R. W., Mohler, F.: Phys. Rev. **11**, 70 (1918).

9 Pitre, J., Krause, L.: Canad. J. Phys. **45**, 2671 (1967).

10 Schneider, W.: Dissertation, Marburg 1971.

11 Hanle, W.: Z. Physik **41**, 164 (1927).

12 Dyakonov, M. I., Perel, V. I.: Soviet Phys. JETP **21**, 227 (1965).

(Mit J' wird der nur optisch angeregte und mit J der nur durch Stöße angeregte Feinstrukturzustand bezeichnet, N' Teilchenzahldichte des Fremdgases, τ mittlere Lebensdauer der 2P -Feinstrukturzustände, $\sigma_{\text{sens}}(J \rightarrow J')$ bzw. $\sigma_{\text{poltrans}}(J \rightarrow J')$ Wirkungsquerschnitt für die Stoßanregung des Zustands $|J\rangle$ vom Zustand $|J'\rangle$ aus bzw. für den Polarisationstransfer von $|J\rangle$ nach $|J'\rangle$, $\sigma_{\text{relax}}(J)$ Stoßwirkungsquerschnitt für die Relaxation im Zustand $|J\rangle$).

Aus der bei Beobachtung unter stationären Bedingungen allein interessierenden stationären Lösung $dN_J/dt, dM_J/dt=0$ folgt mit $N' = p/kT$ (p Fremdgasdruck, T Temperatur des Fremdgases, k Boltzmannkonstante):

$$\frac{1}{V_s} = \frac{N_{J'}}{N_J} = \frac{\sigma_{\text{sens}}(J \rightarrow J')}{\sigma_{\text{sens}}(J' \rightarrow J)} + \frac{kT}{\tau p v_r \sigma_{\text{sens}}(J' \rightarrow J)}, \quad (3)$$

$$\frac{1}{V} = \frac{M_{J'}}{M_J} = \frac{\sigma_{\text{relax}}(J)}{\sigma_{\text{poltrans}}(J' \rightarrow J)} + \frac{kT}{\tau p v_r \sigma_{\text{poltrans}}(J' \rightarrow J)}. \quad (4)$$

Für kleine Fremdgasdrucke ($p \ll 1$ Torr) gilt auch die folgende Approximation:

$$V_s = \frac{N_J}{N_{J'}} \approx \frac{\tau p v_r \sigma_{\text{sens}}(J' \rightarrow J)}{kT}, \quad (5)$$

$$V = \frac{M_J}{M_{J'}} \approx \frac{\tau p v_r \sigma_{\text{poltrans}}(J' \rightarrow J)}{kT}. \quad (6)$$

Aus den Strahlungsleistungen der Fluoreszenzlichtkomponenten lassen sich zu N_J und M_J proportionale Größen gewinnen. Es gilt:

$$N_J/N_{J'} = I_J/I_{J'}. \quad (7)$$

(Wobei I_J die Strahlungsleistung für das sensibilisierte Fluoreszenzlicht und $I_{J'}$ die Strahlungsleistung für das Resonanzfluoreszenzlicht darstellt. Wir verwenden ebenso für $J=1/2$ die Abkürzung I_{D_1} und für $J=3/2$ I_{D_2} . Entsprechend z. B. für die rechtszirkularpolarisierte Zeeman-Komponente des D_1 -Fluoreszenzlichts die Abkürzung $I_{D_1\sigma^+}$.)

Nach dem in Teil I¹ (S. 253) durchgeführten Beweis gilt:

$$M_{3/2}/M_{1/2} = 2(I_{D_2\sigma^+}^0 - I_{D_2\sigma^-}^0)/(I_{D_1\sigma^+}^0 - I_{D_1\sigma^-}^0). \quad (8)$$

($I_{D\sigma}^0$ bezeichnet die über den gesamten Raumwinkelbereich integrierte Strahlungsleistung der jeweiligen Fluoreszenzlichtkomponente.)

Zur Bestimmung der Wirkungsquerschnitte σ_{sens} , σ_{poltrans} und σ_{relax} genügt es folglich, die verschiedenen I_{D-} bzw. $I_{D\sigma}^0$ -Komponenten in Abhängigkeit vom Fremdgasdruck zu messen und nach Maßgabe der Gln. (3)–(8) aufzutragen. Aus der Steigung (Anfangssteigung) der sich

so ergebenden Geraden (Kurven) erhält man dann die gesuchten Wirkungsquerschnitte.

Der Wirkungsquerschnitt $\sigma_{\text{depol}}(1/2)$ beschreibt den Stoßübergang $|1/2\ 1/2\rangle \rightarrow |1/2\ -1/2\rangle$. Der durch diesen Wirkungsquerschnitt beschriebene Stoßprozeß spielt sich nur innerhalb des ${}^2P_{1/2}$ -Zustands ab. Seine Bestimmung ist deshalb von Bedeutung, weil er eine direkte Auskunft über die Gültigkeit der sog. „ m_J -selection-rule“⁴ gibt.

Die Bilanzgleichung für den nur durch Stöße besetzten Zeemanterm im ${}^2P_{1/2}$ -Zustand lautet bei einer optischen Anregung mit rechtszirkularpolarisiertem D_1 -Licht in der Approximation $N_{1/2-1/2} \ll N_{1/2\ 1/2}$:

$$\frac{dN_{1/2-1/2}}{dt} = -\frac{N_{1/2-1/2}}{\tau} + N' v_r \sigma_{\text{depol}}\left(\frac{1}{2}\right) N_{1/2\ 1/2} \quad (9)$$

Die Bezeichnung $\sigma_{\text{depol}}(1/2)$ bezieht sich darauf, daß für kleine Drücke dieser Wirkungsquerschnitt die Depolarisation der Zirkularpolarisation des D_1 -Resonanzfluoreszenzlichts beschreibt. Die Zirkularpolarisation wird durch folgenden Ausdruck beschrieben:

$$\text{Pol} = \frac{I_{D_1\sigma^+}^0 - I_{D_1\sigma^-}^0}{I_{D_1\sigma^+}^0 + I_{D_1\sigma^-}^0} = \frac{N_{1/2\ 1/2} - N_{1/2-1/2}}{N_{1/2\ 1/2} + N_{1/2-1/2}}. \quad (10)$$

In der Approximation für kleine Drücke ($N_{1/2-1/2} \ll N_{1/2\ 1/2}$) folgt nämlich aus Gl. (9)

$$\text{Pol} \approx 1 - 2 \frac{I_{D_1\sigma^-}^0}{I_{D_1\sigma^+}^0} = 1 - 2 \frac{N_{1/2-1/2}}{N_{1/2\ 1/2}} = 1 - 2 \tau v_r \sigma_{\text{depol}}\left(\frac{1}{2}\right) p/kT. \quad (11)$$

Trägt man das Verhältnis $I_{D_1\sigma^-}^0/I_{D_1\sigma^+}^0$ gegen den Fremdgasdruck auf, so erhält man aus der Anfangssteigung der sich ergebenden Kurve den gesuchten Wirkungsquerschnitt.

Ein Experiment, das die Messung der Abhängigkeit der I_D - und $I_D\sigma$ -Komponenten vom Fremdgasdruck erlaubt und vor allem die Erzeugung von Polarisation in einem der Feinstrukturterme gestattet, wurde bereits im ersten Teil¹ ausführlich beschrieben. Die Hinzunahme des starken Magnetfeldes erfordert jedoch noch einige Ergänzungen.

3. Ergänzungen zum Experimentellen in Teil I

Bedingt durch die Beobachtung des Na-Dampfes unter dem Winkel α gegen die Einstrahlungsrichtung sind die in den Gln. (7), (8) und (11) auftretenden Größen $I_D\sigma$ der direkten Messung nicht zugänglich. Statt dessen werden — wie in Teil I — die rechts- und linksdrehenden Anteile I_r und I_l — für jede D -Linie — des unter einem Winkel α zur Ein-

strahlungsrichtung auftretenden Fluoreszenzlichts gemessen.

$$I_r(\alpha) = \frac{1}{4}I_{\sigma^+}^0 (1 + \cos \alpha)^2 + \frac{1}{2}I_{\pi}^0 (\sin \alpha)^2 + \frac{1}{4}I_{\sigma^-}^0 (1 - \cos \alpha)^2, \quad (12)$$

(Zirkularanalysatorstellung: σ^+),

$$I_l(\alpha) = \frac{1}{4}I_{\sigma^-}^0 (1 + \cos \alpha)^2 + \frac{1}{2}I_{\pi}^0 (\sin \alpha)^2 + \frac{1}{4}I_{\sigma^+}^0 (1 - \cos \alpha)^2 \quad (13)$$

(Zirkularanalysatorstellung: σ^-).

Mit I_{σ}^0 und I_{π}^0 wird die über den gesamten Raumwinkelbereich integrierte Strahlungsleistung des σ - und π -Fluoreszenzlichts bezeichnet. Aus Gl. (12) und (13) folgt:

$$I_r(\alpha) + I_l(\alpha) = \frac{1}{2}I_{\sigma^+}^0 (1 + \cos^2 \alpha) + \frac{1}{2}I_{\sigma^-}^0 (1 + \cos^2 \alpha) + I_{\pi}^0 \sin^2 \alpha. \quad (14)$$

Die auf der rechten Seite dieser Gleichung auftretende Summe ist ersichtlich (z.B. nach¹³) gleich der bei polarisationsunempfindlicher Beobachtung unter dem Winkel α zur Einstrahlungsrichtung gemessenen Strahlungsleistung des D_1 - bzw. D_2 -Fluoreszenzlichts. Somit gilt:

$$(I_r(\alpha) + I_l(\alpha))_D = I_D = \text{const.} \quad (15)$$

Diese Beziehung ist allerdings nur solange richtig, als die Strahlungsleistung $I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-} + I_{\pi}$ einer D -Linie winkelunabhängig ist. Eine Winkelabhängigkeit tritt allerdings auf, sobald die Besetzungsstruktur des Ausgangszustands für das Fluoreszenzlicht Orientierungsgrade größer eins aufweist. Dieser Fall kann im $3p^2P_{3/2}$ -Zustand bei einer optischen Anregung mit zirkularpolarisiertem D_2 -Licht eintreten. Dann entsteht (kontinuierliches Lampenspektrum vorausgesetzt) neben einer Vektorpolarisation noch ein Alignment. Es läßt sich jedoch abschätzen, daß die dann für $\alpha = 30^\circ$ auftretende Abweichung von der Isotropie (Gl. (15)) unter 2% liegt, was unsere Messungen nicht merklich beeinflusst.

Mit Gl. (7) und (8) folgt daher:

$$(I_r(\alpha) + I_l(\alpha))_J / (I_r(\alpha) + I_l(\alpha))_J = N_J / N_J = V_s. \quad (16)$$

Wir können somit aus unseren Meßgrößen I_r und I_l den gesuchten Wirkungsquerschnitt σ_{sens} bestimmen.

Aus Gl. (12) und (13) folgt weiterhin:

$$I_r(\alpha) - I_l(\alpha) = (I_{\sigma^+}^0 - I_{\sigma^-}^0) \cos \alpha. \quad (17)$$

Der Faktor $\cos \alpha$ fällt bei der Berechnung von $(I_{\sigma^+}^0 - I_{\sigma^-}^0)_J / (I_{\sigma^+}^0 + I_{\sigma^-}^0)_J$ heraus. Folglich wird der Quotient $(I_r - I_l)_J / (I_r + I_l)_J$ winkelunabhängig und man kann über dieses Verhältnis anhand von Gl. (8) $V = M_J / M_J$ berechnen. Die Kenntnis von M_J / M_J macht aber die Berechnung der σ_{poltrans} und σ_{relax} unter Verwendung von Gl. (4) und (6) möglich.

13 Shore, B. W., Menzel, D. H.: Principles of atomic spectra. New York 1968.

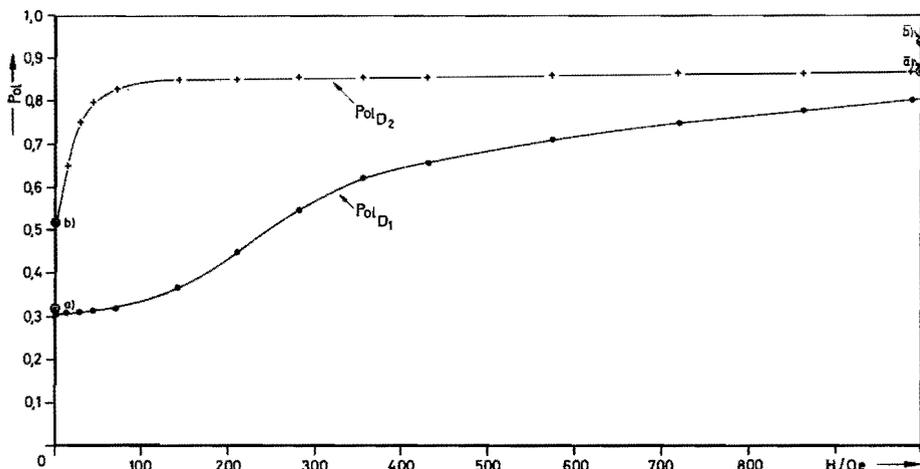


Fig. 1. Abhängigkeit des gemessenen Polarisationsgrads Pol_{D_1} , Pol_{D_2} des Resonanzfluoreszenzlichts in Abhängigkeit vom Magnetfeld H_0 ($p_{\text{Na}} = 2 \cdot 10^{-7}$ Torr). Die mit a), b), \bar{a}), \bar{b}) bezeichneten Punkte stellen die berechneten Polarisationsgrade dar (Voraussetzung: kontinuierliches Lampenspektrum) und zwar für 1. Fall: Angekoppelter Kerndrehimpuls, a) $\text{Pol}_{D_1} = 0,325$ (0,310), b) $\text{Pol}_{D_2} = 0,519$ (0,505). 2. Fall: Vollständig abgekoppelter Kerndrehimpuls, \bar{a}) $\text{Pol}_{D_1} = 0,866$ (0,79 bei 1000 Oe), \bar{b}) $\text{Pol}_{D_2} = 0,936$ (0,86 bei 1000 Oe). (In Klammern: Meßwerte)

Setzt man Gl. (12) und (13) in Gl. (11) ein, so erhält man für $\alpha = 30^\circ$:

$$V_d = : I_{D_1} / I_{D_1} = 0,935 I_{D_1 \sigma^-}^0 / I_{D_1 \sigma^+}^0 + 0,071. \quad (18)$$

Dieser Zusammenhang gestattet uns, auch $\sigma_{\text{depol}}(1/2)$ aus den Meßgrößen I_r und I_l zu berechnen.

Zur Bestimmung des Apparaturfehlers und des Entkopplungsgrades von Hüllen- und Kerndrehimpuls untersuchten wir den Polarisationsgrad

$$\text{Pol}_D(\alpha) = \frac{(I_r(\alpha) - I_l(\alpha))_D}{(I_r(\alpha) + I_l(\alpha))_D} \quad (19)$$

einer D -Linie in Abhängigkeit vom Magnetfeld H_0 und verglichen die für $H_0 = 0$ und $H_0 = 1000$ Oe gemessenen Polarisationsgrade Pol_D mit denen, die unter Berücksichtigung der Gl. (12) und (13) berechnet worden waren. Die dazu notwendige Berechnung von $I_r(\alpha)$ und $I_l(\alpha)$ läßt sich für den Fremdgasdruck Null anhand der bekannten relativen Übergangswahrscheinlichkeiten für die D_1 - und D_2 -Übergänge¹⁴ bei vorgegebener Anregungsart durchführen.

In Fig. 1 ist die gemessene Abhängigkeit des Polarisationsgrades Pol_{D_1} und Pol_{D_2} vom Magnetfeld bei $D_1 \sigma^+$ - bzw. $D_2 \sigma^+$ -Anregung der

14 Condon, E. U., Shortley, G. H.: The theory of atomic spectra. Cambridge 1967 (Nachdruck).

Natriumatome dargestellt. Auffallend ist der relativ niedrige Polarisationsgrad für $H_0=0$. Diese Erscheinung ist auf die Hyperfeinstruktur der 2P -Zustände und dem damit verbundenen Verlust von Spinpolarisation an das Kernspinsystem zurückzuführen.

Der Vergleich von Messung und Rechnung ergibt für $H_0=0$ die folgenden relativen Abweichungen der Polarisationsgrade:

$$\Delta \text{Pol}_{D_1}/\text{Pol}_{D_1}(\text{theoret.})=0,045 \quad \text{und} \quad \Delta \text{Pol}_{D_2}/\text{Pol}_{D_2}(\text{theoret.})=0,028.$$

Diese Abweichungen sind auf den Fehler der Polarisationsoptik und auf die Depolarisation des Lichts durch die Ofenfenster und die Zellenwand zurückzuführen.

Betrachtet man den Verlauf der Pol_{D_1} - und Pol_{D_2} -Kurve, so fällt markant das vollkommen verschiedene Verhalten dieser Kurven im Bereich niedriger Feldstärken auf. Hier macht sich die gegenüber dem $^2P_{3/2}$ -Zustand fast doppelt so große Hyperfeinstrukturaufspaltung¹⁵ des $^2P_{1/2}$ -Zustands bemerkbar. Im $^2P_{3/2}$ -Zustand läßt sich die Abkopplung des Kernspins offenbar mit einem wesentlich kleinerem Magnetfeld (ca. 200 Oe) erreichen als im $^2P_{1/2}$ -Zustand. Bei letzterem ist die Entkopplung bei 1000 Oe noch nicht vollständig, wie man aus der noch endlichen Steigung der Pol_{D_1} -Kurve bei 1000 Oe entnehmen kann. Berücksichtigt man den oben festgestellten Apparatefehler, so stellt man anhand der Fig. 1 ferner fest, daß bei 1000 Oe der für den Fall vollständiger Entkopplung theoretisch erwartete Polarisationsgrad bis auf 3–4% Abweichung erreicht ist.

Gemessen wurde die Abhängigkeit der resonanten und sensibilisierten Fluoreszenzstrahlungsleistungen I_r und I_l in Abhängigkeit vom Edelgasdruck für die verschiedenen Edelgase. Die Messungen wurden bei einer zur Entkopplung noch ausreichenden Magnetfeldstärke $H_0=900$ Oe durchgeführt. Als Beispiel werden in Fig. 2 Meßkurven für die Edelgase He, Ar und Xenon gezeigt. Die Messungen erfolgten sowohl bei $D_1\sigma^+$ -Anregung (Fig. 2a–c) als auch bei $D_2\sigma^+$ -Anregung (Fig. 2d–f). Hierbei war die Temperatur des Na-Metallspiegels in der Resonanzzelle auf 110 °C eingestellt.

Allen Meßkurven ist gemeinsam, daß im untersuchten Druckbereich das jeweils linksdrehende sensibilisierte Fluoreszenzlichtsignal größer ist als das rechtsdrehende. Darin spiegelt sich der schon im ersten Teil¹ (S. 256) erwähnte Polarisationstransfer unter Vorzeichenumkehr wider. Das Auftreten der resonanten I_r -Signale für den Edelgasdruck Null ist jeweils auf die Mitbeobachtung von π -Licht zurückzuführen. Bemerkenswert ist noch die Zunahme des jeweils linksdrehenden reso-

15 Fischer, W.: Fortschr. Physik **18**, 89 (1970).

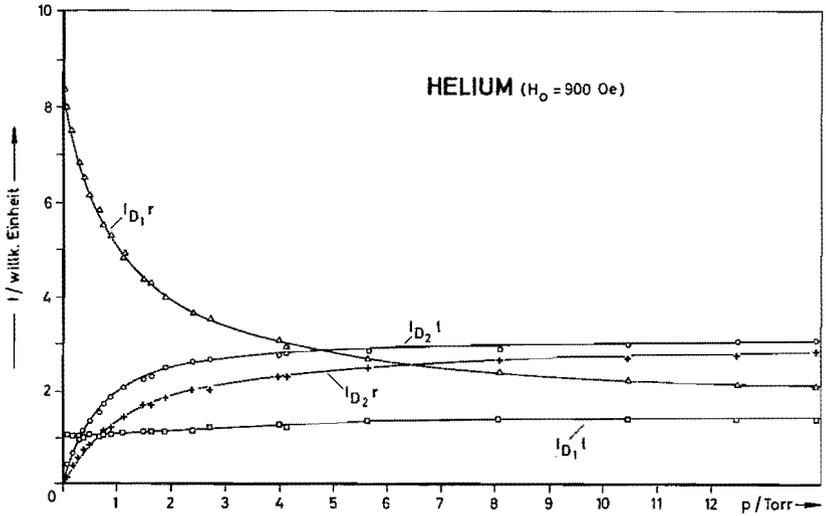


Fig. 2 a

Fig. 2a–f. Abhängigkeit des Signals der rechts bzw. linksdrehenden D_1 -(D_2 -)Komponenten vom Fremdgasdruck bei Anregung mit rechtszirkularpolarisiertem D_1 -Licht (a–c) bzw. mit rechtszirkularpolarisiertem D_2 -Licht (d–f) für die Fremd gases Helium, Argon und Xenon als Beispiel

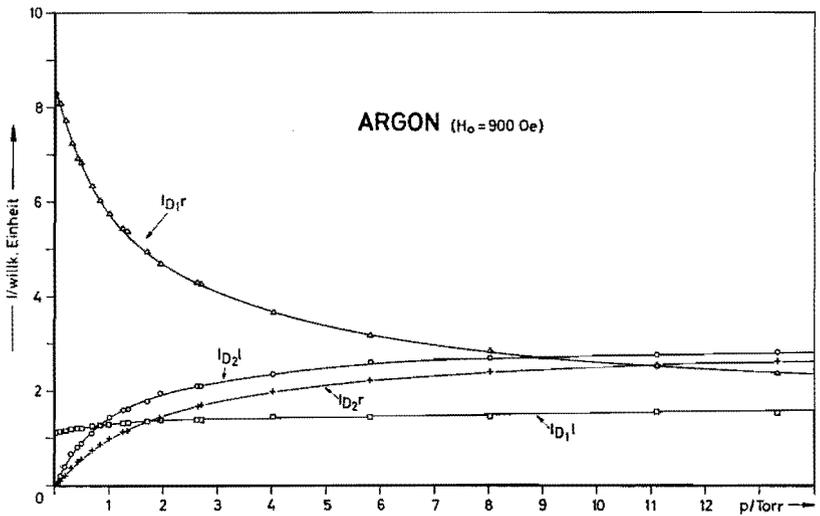


Fig. 2 b

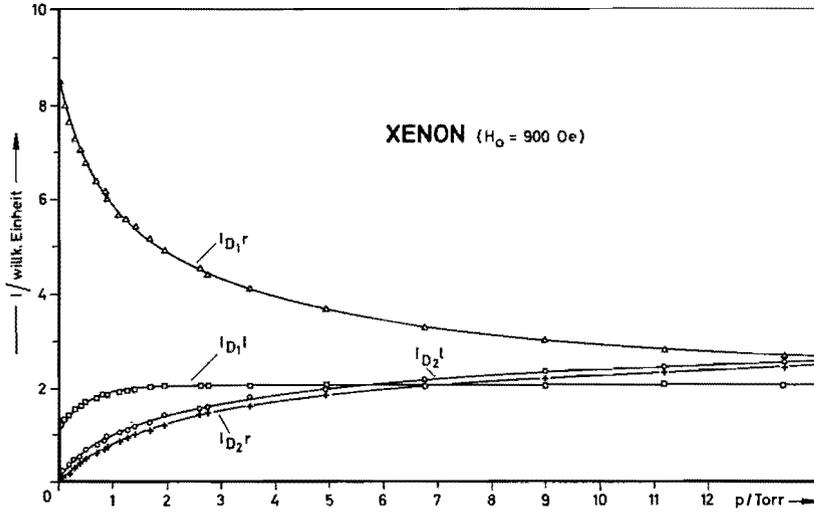


Fig. 2 c

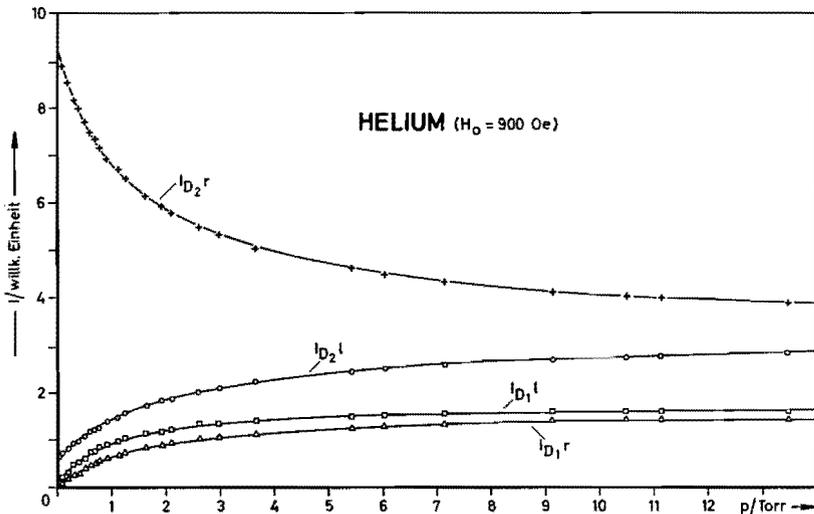


Fig. 2 d

nanten Fluoreszenzlichtsignals I_l bei konstantem Edelgasdruck mit steigender Ordnungszahl der Edelgase. Für hohe Drücke nähern sich ferner die rechts- und linksdrehenden Anteile der sensibilisierten Fluoreszenz einander an, allerdings nicht so rapide wie im schwachen Magnetfeld (zur Erklärung vgl. ¹ S. 255).

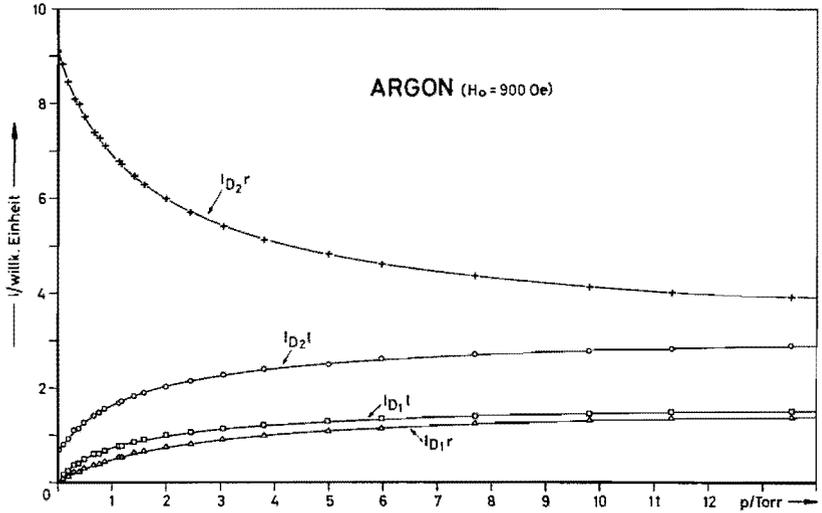


Fig. 2 e

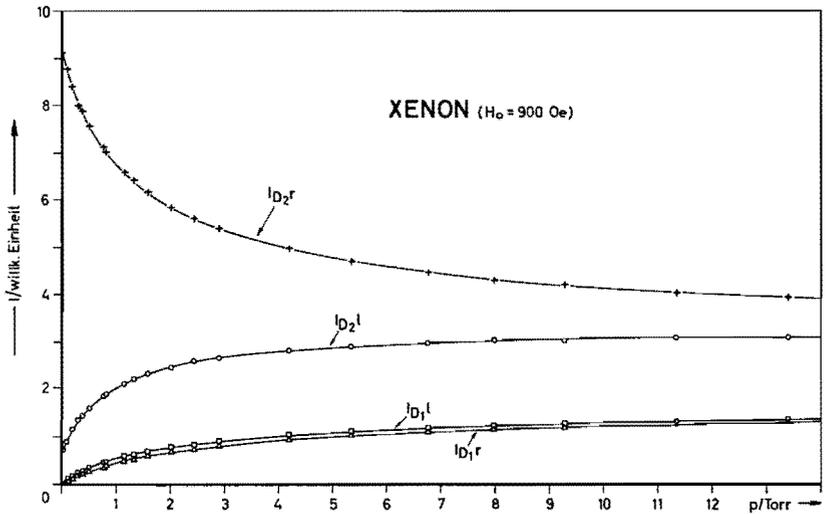


Fig. 2 f

4. Bestimmung der Wirkungsquerschnitte

σ_{sens} , σ_{poltrans} , σ_{relax} und $\sigma_{\text{depol}}(1/2)$

Zur Bestimmung der Wirkungsquerschnitte σ_{sens} , σ_{poltrans} und $\sigma_{\text{depol}}(1/2)$ wird V_s , V und V_d gemäß Gl. (5)–(8)–(16), (18) aus den gemessenen I_l und I_r berechnet und gegen den zugehörigen Fremdgas-

druck aufgetragen. Aus der Anfangssteigung der sich so ergebenden Kurven erhält man mit den Gln. (5), (6), (8) und (11) die gesuchten Wirkungsquerschnitte. Zur Berechnung von σ_{relax} wählten wir die Auftragung $1/V$ gegen $1/p$ (Gl. (4)). σ_{relax} ergibt sich hier aus dem Achsenabschnitt für $1/p=0$.

In Fig. 3–6 wird für ein Edelgas als Beispiel die jeweils gewählte Auftragung gezeigt. (Kurve *a*) $D_1\sigma^+$ - und Kurve *b*) $D_2\sigma^+$ -Anregung).

Die Zahlenwerte für die Wirkungsquerschnitte sind in den Tabellen 1–4 zusammengestellt.

Innerhalb der Fehlergrenzen stimmen die von uns gefundenen Zahlenwerte für die Wirkungsquerschnitte σ_{sens} mit denen von Pitre und Krause⁹ gut überein (Tabelle 1).

Tabelle 1. σ_{sens} -Zahlenwerte für die verschiedenen Edelgase. Mittelwerte aus den Messungen für $H_0=0$ und $H_0=900\text{Oe}$

Die in Klammern angegebenen Wirkungsquerschnitte sind die von Pitre und Krause⁹ gemessenen. Der Meßfehler beträgt bei unseren Messungen $\pm 10\%$.

$$(\eta_s = : \sigma_{\text{sens}}(1/2 \rightarrow 3/2) / \sigma_{\text{sens}}(3/2 \rightarrow 1/2)).$$

Edelgasart	He	Ne	Ar	Kr	Xe
$\sigma_{\text{sens}}(1/2 \rightarrow 3/2)/\text{\AA}^2$	89 (86,0)	79 (67,0)	116 (109,9)	94 (85,0)	99 (89,8)
$\sigma_{\text{sens}}(3/2 \rightarrow 1/2)/\text{\AA}^2$	44 (44,8)	41 (35,4)	61 (55,9)	52 (43,6)	53 (45,6)
η_s	2,02 (1,92)	1,93 (1,91)	1,91 (1,97)	1,81 (1,95)	1,87 (1,97)

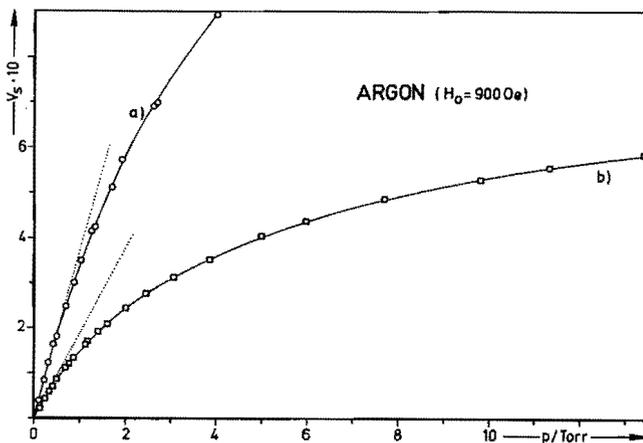


Fig. 3. Abhängigkeit des Verhältnisses V_s vom Edelgasdruck (Beispiel: Argon)

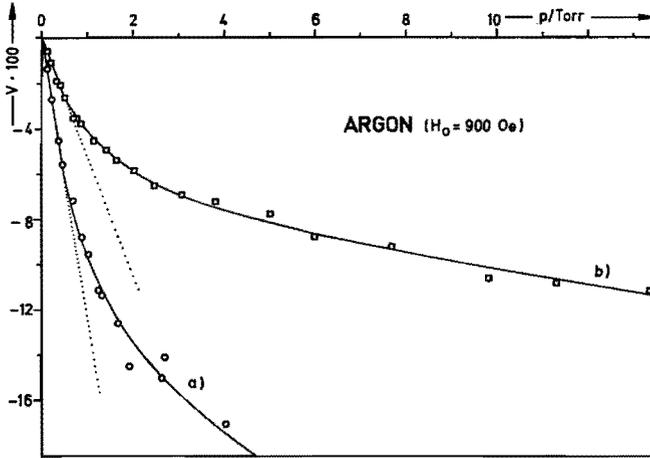


Fig. 4. Abhängigkeit des Verhältnisses V vom Edelgasdruck (Beispiel: Argon)

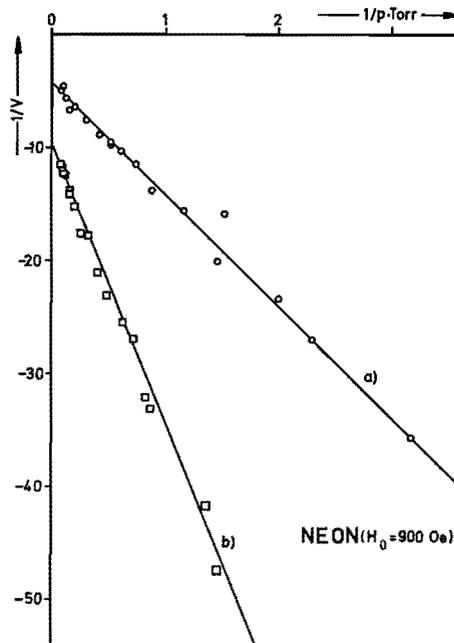


Fig. 5. Abhängigkeit des Verhältnisses $1/V$ vom reziproken Edelgasdruck (Beispiel: Neon)

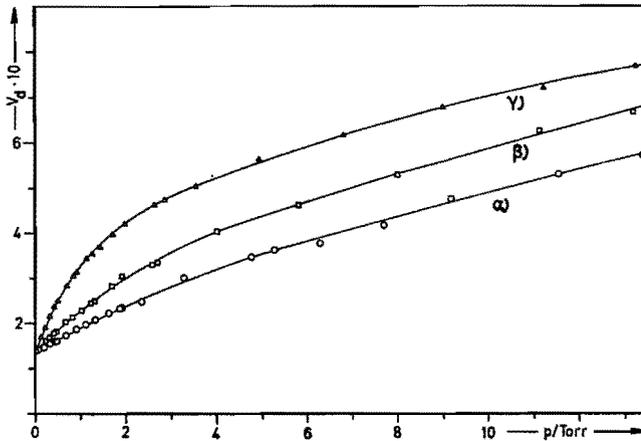


Fig. 6. Auftragung des Verhältnisses V_d gegen den Fremdgasdruck p (Kurve: α) Neon, β) Argon, γ) Xenon)

Tabelle 2. σ_{poltrans} -Zahlenwerte für die verschiedenen Edelgasstoßpartner nach der Anfangssteigungsmethode

Der Meßfehler beträgt: $\pm 10\%$ für $\sigma_{\text{poltrans}}(1/2 \rightarrow 3/2)$, $\pm 15\%$ für $\sigma_{\text{poltrans}}(3/2 \rightarrow 1/2)$.

$$(\eta_p = : \sigma_{\text{poltrans}}(1/2 \rightarrow 3/2) / \sigma_{\text{poltrans}}(3/2 \rightarrow 1/2))$$

Edelgasart	He	Ne	Ar	Kr	Xe
$\sigma_{\text{poltr}}(1/2 \rightarrow 3/2)/\text{\AA}^2$	-64,0	-51,8	-80,7	-55,5	-43,3
$\sigma_{\text{poltr}}(3/2 \rightarrow 1/2)/\text{\AA}^2$	-6,6	-5,5	-8,7	-6,1	-4,8
η_p	9,7	9,5	9,3	9,1	9,0

Das negative Vorzeichen des Wirkungsquerschnitts σ_{poltrans} soll den Polarisationstransfer unter Vorzeichenumkehr andeuten. Es ergibt sich aus der konsequenten Anwendung der abgeleiteten Bestimmungsgleichungen für diesen Wirkungsquerschnitt. Insgesamt stellt man fest, daß σ_{poltrans} und σ_{sens} von gleicher Größenordnung sind. σ_{poltrans} ist dem Betrage nach etwa dreimal so groß wie im Fall $H_0=0$ (s. Teil I¹).

Die in Tabelle 2 und 1 zusammengestellten Zahlenwerte für σ_{poltrans} und σ_{sens} dienen weiter unten zur Berechnung der Parameter a_1 und a_2 .

Der Fehler der σ_{relax} (Tabelle 3) ist relativ hoch, da sich der Fehler der σ_{poltrans} der Ungenauigkeit der Bestimmung des Achsenabschnitts überlagert. Er liegt bei $\pm 30\%$. Die größere Abweichung von der allgemeinen Tendenz beim Krypton ist wahrscheinlich auf Meßfehler zurückzuführen.

Tabelle 3. σ_{relax} - und σ_{poltrans} -Zahlenwerte für die verschiedenen Edelgasstoßpartner nach der Achsenabschnittsmethode (Gl. (4))

Die in Klammern aufgeführten σ_{relax} wurden mit Hilfe der weiter unten bestimmten Parameter a_1 und a_2 berechnet.

Edelgasart	$(\eta_r = \sigma_{\text{relax}}(1/2)/\sigma_{\text{relax}}(3/2))$				
	He	Ne	Ar	Kr	Xe
$\sigma_{\text{poltr}}(1/2 \rightarrow 3/2)/\text{Å}^2$	-71,5	-58,0	-94,5	-62,2	-48,0
$\sigma_{\text{poltr}}(3/2 \rightarrow 1/2)/\text{Å}^2$	-7,55	-5,90	-9,95	-6,30	-5,00
η_p	9,5	9,8	9,5	9,8	9,6
$\sigma_{\text{relax}}(3/2)/\text{Å}^2$	95	118	157	194	159
	(84)	(71)	(107)	(89)	(96)
$\sigma_{\text{relax}}(1/2)/\text{Å}^2$	90	108	150	130	149
	(110)	(110)	(155)	(147)	(164)
η_r	0,95	0,92	0,96	0,67	0,94

Tabelle 4. $\sigma_{\text{depol}}(1/2)$ -Zahlenwerte für die verschiedenen Edelgasstoßpartner. Meßfehler: $\pm 10\%$

Edelgasart	He	Ne	Ar	Kr	Xe
$\sigma_{\text{depol}}(1/2)/\text{Å}^2 \cdot 0,935$	15,6	15,6	30,7	64,8	85,5

Bemerkenswert ist ferner die starke Zunahme des Wirkungsquerschnitts $\sigma_{\text{depol}}(1/2)$ mit der Ordnungszahl des jeweiligen Edelgases (Tabelle 4).

5. Berechnung der Parameter a_1 und a_2 aus den gemessenen Wirkungsquerschnitten

Hierbei gehen wir von dem Bilanzgleichungssystem für den jeweils nur durch Stöße besetzten Feinstrukturzustand aus:

$$\frac{dN_{Jm_J}}{dt} = -\frac{N_{Jm_J}}{\tau} - N' v_r \left\{ \sum_{J'm_{J'}} \sigma(Jm_J \rightarrow J'm_{J'}) N_{Jm_J} - \sigma(J'm_{J'} \rightarrow Jm_J) N_{J'm_{J'}} \right\} \quad (20)$$

(N' Teilchenzahldichte des Fremdgases, τ mittlere Strahlungslebensdauer der 2P -Zustände, v_r Relativgeschwindigkeit der Stoßpartner, N_{Jm_J} Besetzungszahl des nur durch Stöße besetzten Zustands $|Jm_J\rangle$, $N_{J'm_{J'}}$ Besetzungszahl des optisch angeregten Zustands $|J'm_{J'}\rangle$, $\sigma(Jm_J \rightarrow J'm_{J'})$ Stoßwirkungsquerschnitt für den Übergang $|Jm_J\rangle \rightarrow |J'm_{J'}\rangle$; die Wirkungsquerschnitte σ werden der Tabelle 1 bei Grawert⁷ entnommen, sie stellen sich dort dar als Linearkombinationen der Parameter a_1 und a_2).

Durch Zusammenfassen dieser Bilanzgleichungen nach Maßgabe der Def.-Gleichung für N_J und M_J ($N_J = \sum N_{Jm_J}$, $M_J = \frac{1}{N_J} \sum m_J N_{Jm_J}$) erhält man eine Bilanzgleichung für M_J und N_J . Durch Koeffizientenvergleich mit den vorher ad hoc aufgestellten Bilanzgleichungen (1), (2) und (9) ergibt sich der gesuchte Zusammenhang zwischen den Parametern a_1 , a_2 und den phänomenbezogenen Wirkungsquerschnitten σ_{sens} , σ_{poltrans} , σ_{relax} und σ_{depol} . Im einzelnen sieht dieser Zusammenhang wie folgt aus:

$$\sigma_{\text{sens}}(1/2 \rightarrow 3/2) = 2(3a_1 + 5a_2), \quad (21.1)$$

$$\sigma_{\text{sens}}(3/2 \rightarrow 1/2) = (3a_1 + 5a_2), \quad (21.2)$$

$$\sigma_{\text{poltrans}}(1/2 \rightarrow 3/2) = 10(a_1 - a_2), \quad (21.3)$$

$$\sigma_{\text{poltrans}}(3/2 \rightarrow 1/2) = (a_1 - a_2), \quad (21.4)$$

$$\sigma_{\text{relax}}(1/2) = 22a_1 + 10a_2, \quad (21.5)$$

$$\sigma_{\text{relax}}(3/2) = 7a_1 + 9a_2, \quad (21.6)$$

$$\sigma_{\text{depol}}(1/2) = 8a_1. \quad (21.7)$$

Die bei der Herleitung der Gln. (21) benutzte Stoßmatrix⁷ (Tabelle 1) ist unter der Voraussetzung vernachlässigbaren Energieunterschieds der Zustände $^2P_{1/2}$ und $^2P_{3/2}$ gewonnen worden. Beim Natrium beträgt dieser Energieunterschied 2 meV. Berücksichtigt man diesen Energieunterschied, so erhält man für das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte:

$$\eta_P = \frac{\sigma_{\text{poltrans}}(1/2 \rightarrow 3/2)}{\sigma_{\text{poltrans}}(3/2 \rightarrow 1/2)} = 10 \exp(-2 \text{ meV}/kT) \approx 9,4 \quad (22.1)$$

$$\eta_s = \frac{\sigma_{\text{sens}}(1/2 \rightarrow 3/2)}{\sigma_{\text{sens}}(3/2 \rightarrow 1/2)} = 2 \exp(-2 \text{ meV}/kT) \approx 1,88 \quad (22.2)$$

(für $T \approx 383 \text{ K}$)

statt der theoretischen Werte 10 bzw. 2.

Für $\eta_r = \sigma_{\text{relax}}(1/2)/\sigma_{\text{relax}}(3/2)$ folgt aus Gl. (21.5) und (21.6)

$$\eta_r > 1. \quad (23)$$

Der Vergleich mit den Meßwerten zeigt, daß Gl. (22.1) und (22.2) bei unseren Messungen gut erfüllt sind. Für das Verhältnis η_r erhalten wir in allen Fällen im Gegensatz zu Gl. (23) $\eta_r < 1$. Hierbei muß man allerdings berücksichtigen, daß der Fehler der σ_{relax} mit $\pm 30\%$ relativ hoch ist. Wir verzichteten daher auf die Berechnung der Parameter a_1 und a_2 anhand der Wirkungsquerschnitte σ_{relax} .

Tabelle 5. Zusammenstellung der berechneten Zahlenwerte für die Parameter a_1 und a_2 . Der Fehler für die a_1, a_2 liegt bei $\pm 15\%$ ($D_1\sigma^+$ -Anregung) bzw. $\pm 20\%$ ($D_2\sigma^+$ -Anregung)

σ	Edelgase					Methode
	He	Ne	Ar	Kr	Xe	
$a_1/\text{\AA}^2$	1,56	1,70	2,20	2,40	3,48	$D_1\sigma^+$ -Anregung*
	1,38	1,73	2,19	2,70	3,63	$D_2\sigma^+$ -Anregung
	2,06	2,06	4,10	8,67	11,40	aus $\sigma_{\text{depol}}(1/2)$
$a_2/\text{\AA}^2$	7,98	6,88	10,3	7,96	7,83	$D_1\sigma^+$ -Anregung*
	7,98	7,16	10,9	8,80	8,40	$D_2\sigma^+$ -Anregung
$\beta = a_1/a_2$	0,185	0,245	0,208	0,305	0,439	Mittelwert
Für Argon: $a_1 = 1,7 \text{\AA}^2$, $a_2 = 8,0 \text{\AA}^2$; $\beta_1 = 5/24$						Theoretische Berechnung nach Elbel ¹⁶

* Bei diesen a_1 und a_2 ist der Energieunterschied von 2 meV zwischen den 2P -Feinstrukturzuständen noch nicht berücksichtigt.

In Tabelle 5 sind die gemäß den Gln. (21.1)–(21.4) und (21.7) unter Verwendung der gemessenen Wirkungsquerschnitte σ_{sens} , σ_{poltrans} und σ_{depol} berechneten Zahlenwerte für die Parameter a_1 und a_2 zusammengestellt.

Die Tabelle 5 zeigt zunächst, daß die aus den Wirkungsquerschnitten σ_{sens} und σ_{poltrans} erhaltenen Werte für a_1 und a_2 bei $D_1\sigma^+$ -Anregung und $D_2\sigma^+$ -Anregung im Rahmen der Meßgenauigkeit gut übereinstimmen. Die Meßfehler betragen im ersten Fall $\pm 15\%$ und im zweiten wegen der ungenaueren $\sigma_{\text{poltrans}}(3/2 \rightarrow 1/2)$ -Bestimmung $\pm 20\%$. Weiterhin erweist sich, daß zu den schwereren Edelgasen hin die Größe von a_1 zunimmt. Dies ist besonders deutlich bei den aus σ_{depol} folgenden a_1 .

Man kann nun nicht erwarten, daß für die verschiedenen Edelgasstoßpartner die gleichen Zahlenwerte für a_1 und a_2 folgen, da letztere, wie Elbel¹⁶ inzwischen gezeigt hat, potentialabhängig sind. Bei der Rechnung von Elbel ergibt sich, daß nur das Verhältnis $\beta = a_1/a_2$ potentialunabhängig ist. Die von Elbel anhand von Potentialdaten für Argon berechneten Zahlenwerte für a_1 und a_2 stimmen mit unseren Messungen erstaunlich gut überein.

Die Zunahme des Zahlenwerts für a_1 zum Xenon hin bei nahezu konstantem a_2 bewirkt entsprechend eine Zunahme des Verhältnisses a_1/a_2 . Diese Tendenz wird nur beim Argon unterbrochen. Aus den Messungen könnte man somit folgern, daß a_1 wesentlich stärker vom Stoßpartner abhängt als a_2 . Dies ist aber nach den Rechnungen von Elbel¹⁶ nicht zu erklären. Offensichtlich weist dieses Verhalten auf eine

¹⁶ Elbel, M.: Z. Physik **248**, 375 (1971).

Verletzung der Grundannahme des ruhenden „Spins“ hin, die allen betrachteten Modellen zugrundeliegt. Die aus $\sigma_{\text{depol}}(1/2)$ folgenden a_1 stimmen nur für Helium, Neon und m.E. für Argon mit den a_1 aus σ_{sens} und σ_{poltrans} überein. Für diese Edelgase zeigt sich ein nahezu konstantes Verhältnis β . Der Mittelwert aus diesen Zahlenwerten für β lautet: $\beta = a_1/a_2 = 0,22 \pm 0,07$, der gut zu dem theoretischen Näherungswert von Elbel¹⁶ $\beta = 5/24$ paßt. Für Krypton und Xenon zeigen sich signifikante Abweichungen.

6. Zusammenfassung

Es wurde ein bisher unbeobachteter Effekt, die Stoßübertragung von Polarisation zwischen den Feinstrukturtermen des Natrium $3p\ ^2P$ -Zustands bei Natrium-Edelgas-Stößen, beschrieben. Es zeigt sich, daß der Wirkungsquerschnitt des Polarisationstrfers die erhebliche Größe von $40-100\ \text{\AA}^2$ beim Übergang vom $^2P_{1/2}$ - zum $^2P_{3/2}$ -Zustand erreicht und damit vergleichbar ist mit dem Wirkungsquerschnitt der Stoßumwandlung der Feinstrukturterme selbst: $40-120\ \text{\AA}^2$. Darüber hinaus konnte der von der Theorie vorhergesagte Einfluß der Kernspins auf den Polarisationstrfer experimentell bestätigt werden, der darin besteht, daß im Fall des angekoppelten Kernspins der Polarisationstrfer unter Vorzeichenerhaltung und im Fall des abgekoppelten Kernspins unter Vorzeichenumkehr erfolgt.

Zusätzlich wurden Wirkungsquerschnitte für die bei der Stoßdurchmischung der Natrium $3p\ ^2P$ -Zeemanzustände gleichzeitig beobachteten Stoßphänomene, wie Relaxation in einem Feinstrukturterm, sensibilisierte Fluoreszenz und Depolarisation des Polarisationsgrads des Resonanzfluoreszenzlichts experimentell bestimmt.

Insgesamt stellen die experimentellen Wirkungsquerschnitte ein System von Größen dar, welches nach den Forderungen der Theorie auf nur zwei Parameter: a_1 und a_2 zurückführbar sein soll. Diese Rückführung erwies sich als möglich für die leichteren Edelgase. Für die schweren Edelgase ergaben sich Diskrepanzen, die die Einführung weiterer, theoretischer Parameter erforderlich machen (s. Grawert⁷, Tabelle 2).

Das Verhältnis a_1/a_2 erwies sich für Helium, Neon und Argon als nahezu konstant. Der Mittelwert ist:

$$a_1/a_2 = 0,22 \pm 0,07.$$

Dieser Wert a_1/a_2 gestattete uns, verschiedene Stoßmodelle zu obigem Stoßprozeß zu testen.

Zunächst folgt aus dem gesicherten Befund $a_1/a_2 \neq 0$, daß das adiabatische Modell^{2,16}, das zu dem ($m=1/2 \rightarrow m=-1/2$)-Übergangsverbot und zu $a_1=0$ führt, zu verwerfen ist.

Ferner zeigt sich, daß das Zweihaltepunktmodell von Elbel¹⁶ mit $a_1/a_2=0,21$ eine wesentlich bessere Näherung darstellt als das l -Randomisationsmodell³ mit $a_1/a_2=0,33$.

Aus den Diskrepanzen für Krypton und Xenon schlossen wir, daß hier die Grundannahme des ruhenden Spins nicht mehr gilt.

Der Autor dankt den Herren Prof. Dr. G. Grawert und Prof. Dr. M. Elbel für förderliche Diskussionen und der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die Bereitstellung von Sachmitteln.

Dr. W. B. Schneider
Physikalisches Institut
der Universität Marburg
D-3550 Marburg a. d. Lahn, Renthof 5
Deutschland