

# 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 Na- $3p^2P$ -Zustand ausreicht (900 Oe). (Über den Fall des schwachen Magnetfeldes wurde im ersten Teil<sup>1</sup> 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 Autoren<sup>2-7</sup> 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<sup>9, 8</sup>.
2. Polarisationstransfer<sup>1, 10</sup>.
3. Relaxation.
4. Depolarisation des Resonanzfluoreszenzlichts<sup>11</sup>.

Diese Phänomene führen zu unabhängigen Verfahren zur Bestimmung von Stoßwirkungsquerschnitten (WQ), die jeweils auf das Phänomen selber bezogen sind. Wir nennen sie:  $\sigma_{\text{sens}}$  (WQ für die sensibilisierte Fluoreszenz),  $\sigma_{\text{poltrans}}$  (WQ für den Polarisationstransfer),  $\sigma_{\text{relax}}$  (WQ für die Relaxation) und  $\sigma_{\text{depol}}$  (WQ für die Depolarisation des Resonanzfluoreszenzlichts). Die Messung dieser Wirkungsquerschnitte erlaubt uns dann, die von Grawert<sup>7</sup> 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 Perel<sup>12</sup> 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,  $\tau$  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 I<sup>1</sup> (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  $\sigma_{\text{sens}}$ ,  $\sigma_{\text{poltrans}}$  und  $\sigma_{\text{relax}}$  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“<sup>4</sup> 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 Fremddruck 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 Fremddruck erlaubt und vor allem die Erzeugung von Polarisation in einem der Feinstrukturterme gestattet, wurde bereits im ersten Teil<sup>1</sup> 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  $\alpha$  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  $\alpha$  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:  $\sigma^+$ ),

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

(Zirkularanalysatorstellung:  $\sigma^-$ ).

Mit  $I_{\sigma}^0$  und  $I_{\pi}^0$  wird die über den gesamten Raumwinkelbereich integrierte Strahlungsleistung des  $\sigma$ - und  $\pi$ -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. nach<sup>13</sup>) gleich der bei polarisationsunempfindlicher Beobachtung unter dem Winkel  $\alpha$  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  $\sigma_{\text{sens}}$  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  $\sigma_{\text{poltrans}}$  und  $\sigma_{\text{relax}}$  unter Verwendung von Gl. (4) und (6) möglich.

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

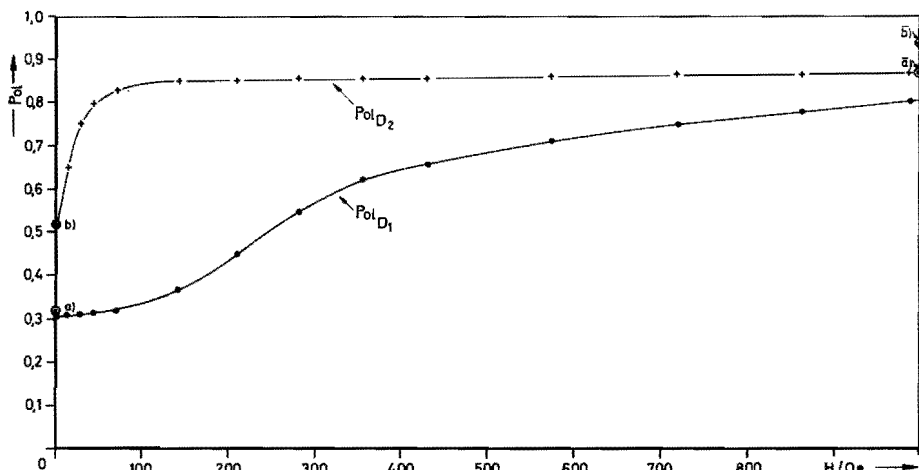


Fig. 1. Abhängigkeit des gemessenen Polarisationsgrads  $\text{Pol}_{D_1}$ ,  $\text{Pol}_{D_2}$  des Resonanzfluoreszenzlichts in Abhängigkeit vom Magnetfeld  $H_0$  ( $p_{\text{Na}} = 2 \cdot 10^{-7}$  Torr). Die mit a), b),  $\bar{a}$ ),  $\bar{b}$ ) bezeichneten Punkte stellen die berechneten Polarisationsgrade 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  $\text{Pol}_D$  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  $D_2$ -Übergänge<sup>14</sup> bei vorgegebener Anregungsart durchführen.

In Fig. 1 ist die gemessene Abhängigkeit des Polarisationsgrades  $\text{Pol}_{D_1}$  und  $\text{Pol}_{D_2}$  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  $\text{Pol}_{D_1}$ - und  $\text{Pol}_{D_2}$ -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 Hyperfeinstrukturaufspaltung<sup>15</sup> 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  $\text{Pol}_{D_1}$ -Kurve bei 1000 Oe entnehmen kann. Berücksichtigt man den oben festgestellten Apparatfehler, 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 Teil<sup>1</sup> (S. 256) erwähnte Polarisationstransfer unter Vorzeichenumkehr wider. Das Auftreten der resonanten  $I_r$ -Signale für den Edelgasdruck Null ist jeweils auf die Mitbeobachtung von  $\pi$ -Licht zurückzuführen. Bemerkenswert ist noch die Zunahme des jeweils linksdrehenden reso-

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

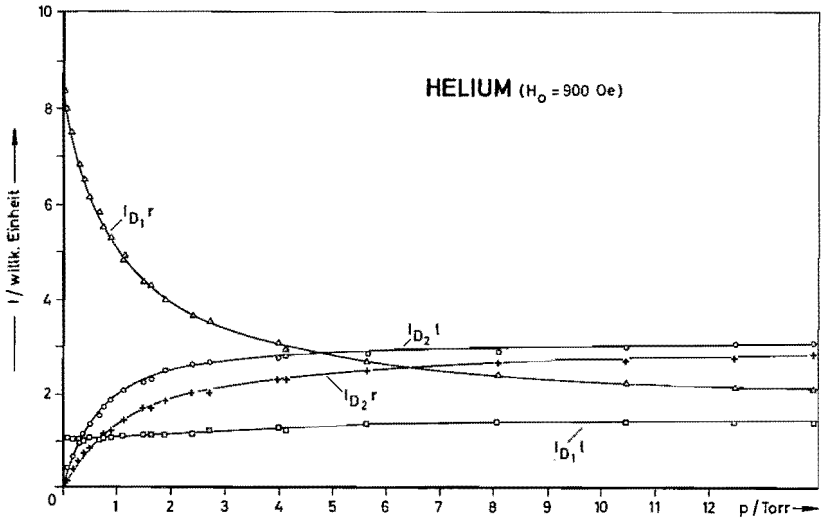


Fig. 2 a

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

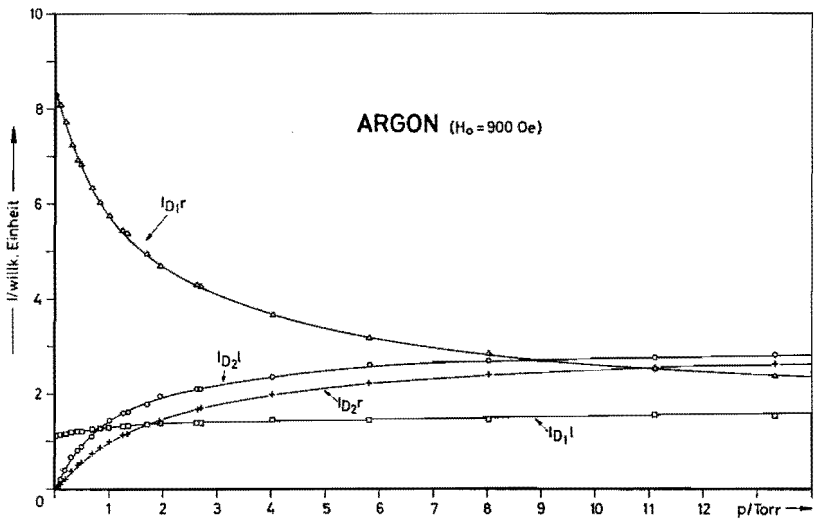


Fig. 2 b



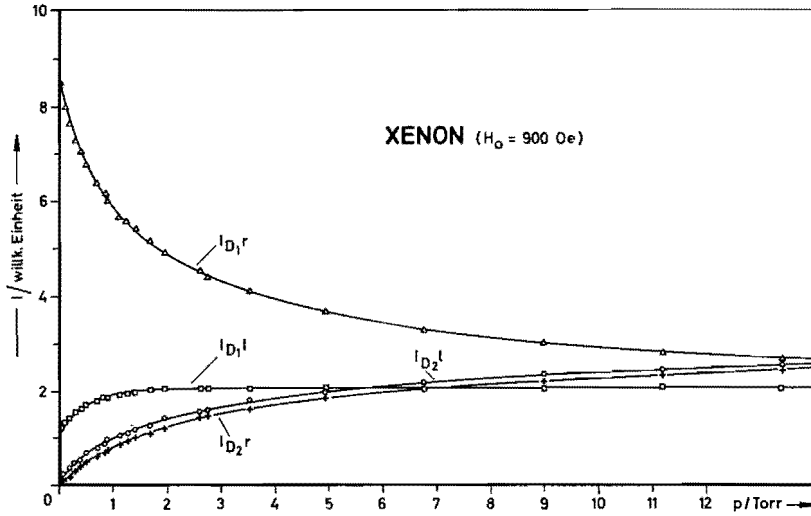


Fig. 2 c

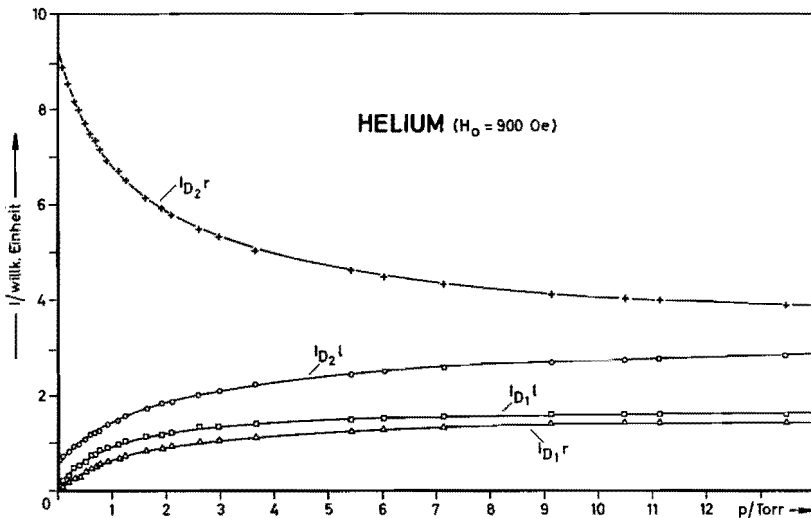


Fig. 2 d

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. <sup>1</sup> S. 255).

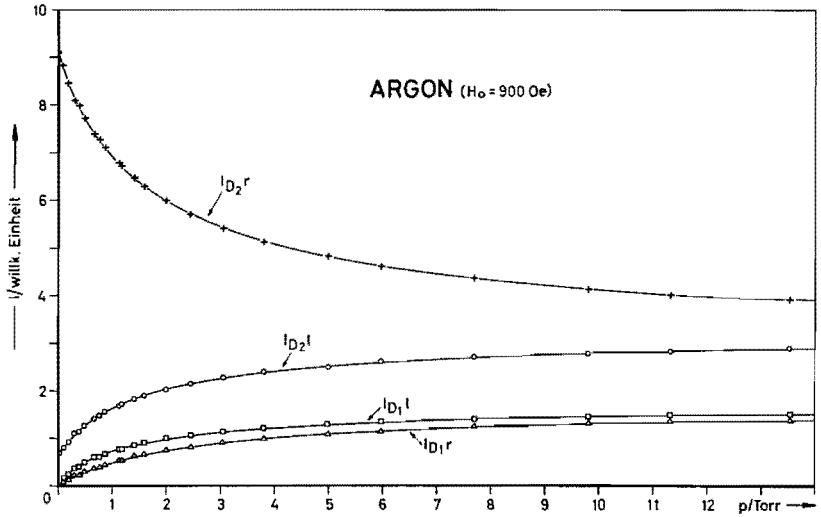


Fig. 2 e

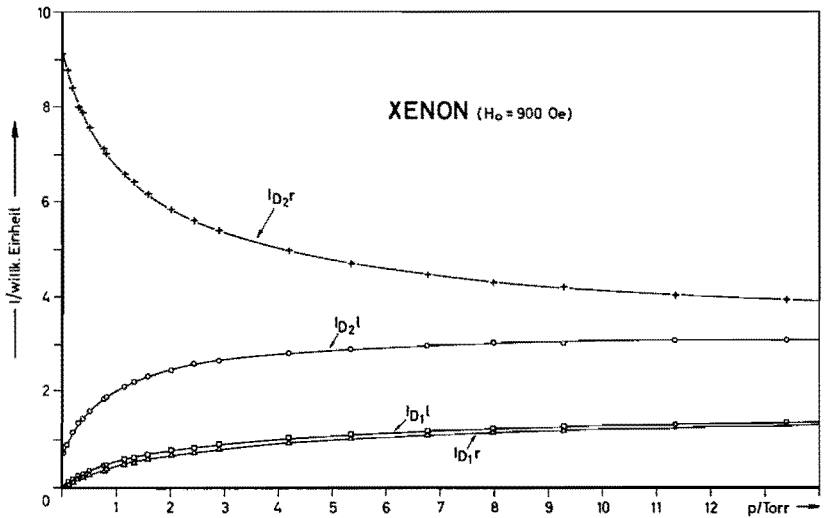


Fig. 2 f

#### 4. Bestimmung der Wirkungsquerschnitte

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

Zur Bestimmung der Wirkungsquerschnitte  $\sigma_{\text{sens}}$ ,  $\sigma_{\text{poltrans}}$  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  $\sigma_{\text{relax}}$  wählten wir die Auftragung  $1/V$  gegen  $1/p$  (Gl. (4)).  $\sigma_{\text{relax}}$  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  $\sigma_{\text{sens}}$  mit denen von Pitre und Krause<sup>9</sup> gut überein (Tabelle 1).

Tabelle 1.  $\sigma_{\text{sens}}$ -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 Krause<sup>9</sup> 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)
$\eta_s$	2,02 (1,92)	1,93 (1,91)	1,91 (1,97)	1,81 (1,95)	1,87 (1,97)

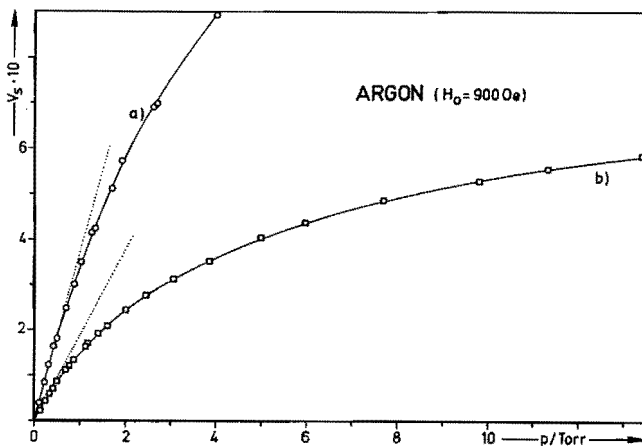


Fig. 3. Abhängigkeit des Verhältnisses  $V_s$  vom Edelgasdruck (Beispiel: Argon)

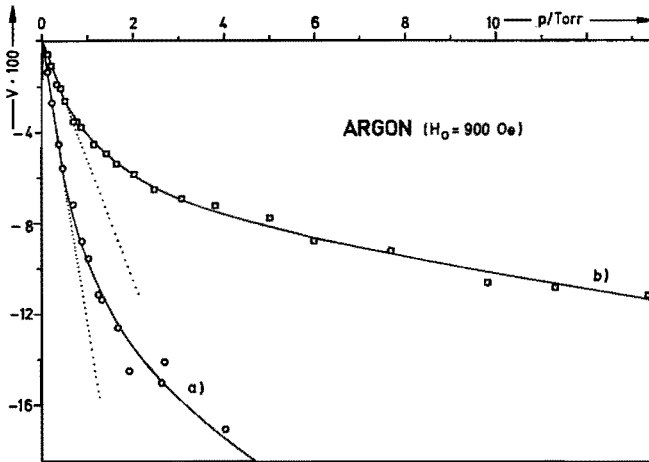


Fig. 4. Abhängigkeit des Verhältnisses  $V$  vom Edelgasdruck (Beispiel: Argon)

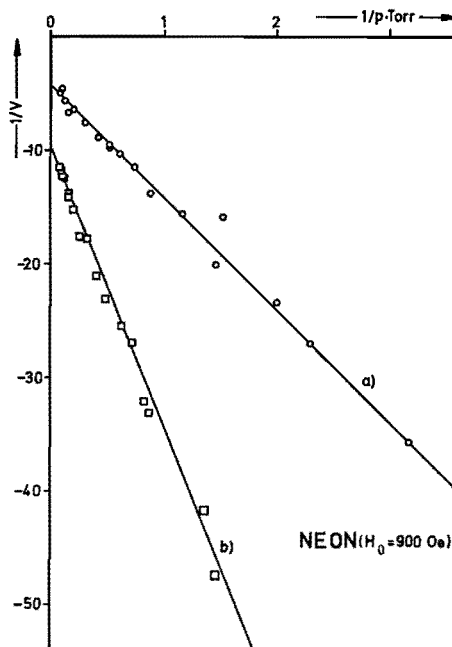


Fig. 5. Abhängigkeit des Verhältnisses  $1/V$  vom reziproken Edelgasdruck (Beispiel: Neon)

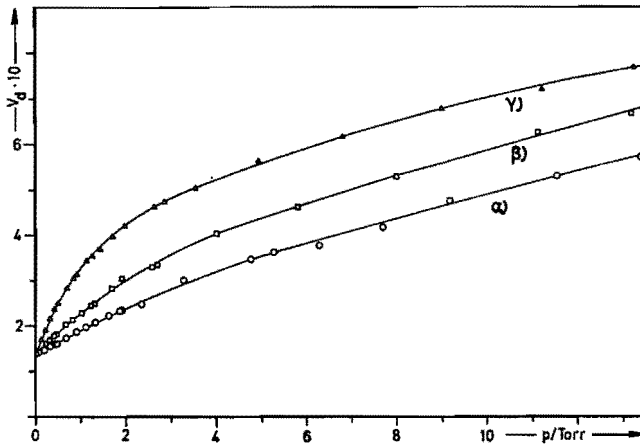


Fig. 6. Auftragung des Verhältnisses  $V_d$  gegen den Fremdgasdruck  $p$  (Kurve:  $\alpha$ ) Neon,  $\beta$ ) Argon,  $\gamma$ ) Xenon)

Tabelle 2.  $\sigma_{\text{poltrans}}$ -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
$\eta_p$	9,7	9,5	9,3	9,1	9,0

Das negative Vorzeichen des Wirkungsquerschnitts  $\sigma_{\text{poltrans}}$  soll den Polarisationstransfer unter Vorzeichenumkehr andeuten. Es ergibt sich aus der konsequenten Anwendung der abgeleiteten Bestimmungsgleichungen für diesen Wirkungsquerschnitt. Insgesamt stellt man fest, daß  $\sigma_{\text{poltrans}}$  und  $\sigma_{\text{sens}}$  von gleicher Größenordnung sind.  $\sigma_{\text{poltrans}}$  ist dem Betrage nach etwa dreimal so groß wie im Fall  $H_0=0$  (s. Teil I<sup>1</sup>).

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

Der Fehler der  $\sigma_{\text{relax}}$  (Tabelle 3) ist relativ hoch, da sich der Fehler der  $\sigma_{\text{poltrans}}$  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.  $\sigma_{\text{relax}}$ - und  $\sigma_{\text{poltrans}}$ -Zahlenwerte für die verschiedenen Edelgasstoßpartner nach der Achsenabschnittsmethode (Gl. (4))

Die in Klammern aufgeführten  $\sigma_{\text{relax}}$  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
$\eta_p$	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)
$\eta_r$	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,  $\tau$  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  $\sigma$  werden der Tabelle 1 bei Grawert<sup>7</sup> 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  $\sigma_{\text{sens}}$ ,  $\sigma_{\text{poltrans}}$ ,  $\sigma_{\text{relax}}$  und  $\sigma_{\text{depol}}$ . 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 Stoßmatrix<sup>7</sup> (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  $\eta_r$  erhalten wir in allen Fällen im Gegensatz zu Gl. (23)  $\eta_r < 1$ . Hierbei muß man allerdings berücksichtigen, daß der Fehler der  $\sigma_{\text{relax}}$  mit  $\pm 30\%$  relativ hoch ist. Wir verzichteten daher auf die Berechnung der Parameter  $a_1$  und  $a_2$  anhand der Wirkungsquerschnitte  $\sigma_{\text{relax}}$ .

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)

$\sigma$	Edelgase					Methode
	He	Ne	Ar	Kr	Xe	
$a_1/\text{Å}^2$	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 $\sigma_{\text{depol}}(1/2)$
$a_2/\text{Å}^2$	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: $a_1 = 1,7 \text{ Å}^2$ , $a_2 = 8,0 \text{ Å}^2$ ; $\beta_1 = 5/24$						Theoretische Berechnung nach Elbel <sup>16</sup>

\* 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  $\sigma_{\text{sens}}$ ,  $\sigma_{\text{poltrans}}$  und  $\sigma_{\text{depol}}$  berechneten Zahlenwerte für die Parameter  $a_1$  und  $a_2$  zusammengestellt.

Die Tabelle 5 zeigt zunächst, daß die aus den Wirkungsquerschnitten  $\sigma_{\text{sens}}$  und  $\sigma_{\text{poltrans}}$  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  $\sigma_{\text{depol}}$  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 Elbel<sup>16</sup> 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 Elbel<sup>16</sup> nicht zu erklären. Offensichtlich weist dieses Verhalten auf eine

<sup>16</sup> 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  $\sigma_{\text{sens}}$  und  $\sigma_{\text{poltrans}}$  überein. Für diese Edelgase zeigt sich ein nahezu konstantes Verhältnis  $\beta$ . Der Mittelwert aus diesen Zahlenwerten für  $\beta$  lautet:  $\beta = a_1/a_2 = 0,22 \pm 0,07$ , der gut zu dem theoretischen Näherungswert von Elbel<sup>16</sup>  $\beta = 5/24$  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. Grawert<sup>7</sup>, 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<sup>2,16</sup>, 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 Elbel<sup>16</sup> mit  $a_1/a_2=0,21$  eine wesentlich bessere Näherung darstellt als das  $l$ -Randomisationsmodell<sup>3</sup> 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