Z. Physik 241, 244-257 (1971) © by Springer-Verlag 1971

24

Übertragung von Polarisation bei sensibilisierenden Stößen angeregter Natriumatome

I. Im feldfreien Falle*

M. ELBEL und W. SCHNEIDER ** Physikalisches Institut der Universität, Marburg

Eingegangen am 16. Oktober 1970

* Herrn Professor Dr. Wilhelm Hanle zum 70. Geburtstag gewidmet.

^{**} Auszug aus der Dissertation von W. Schneider, Marburg 1970.

Polarization Transfer in Sensitizing Collisions of Excited Sodium Atoms

The transfer of magnetic polarization from state $3p {}^{2}P_{1/2}$ to state $3p {}^{2}P_{3/2}$ in sensitizing collisions of sodium atoms with noble gas atoms has been observed. Sodium atoms were excited by absorption of $D_{1}\sigma^{+}$ -quanta. When buffer gas was added to the sodium vapour, unequal amounts of $D_{2}\sigma^{+}$ and $D_{2}\sigma^{-}$ quanta could be detected in the fluorescent light. The difference of the amounts turned out to be proportional to the polarization transferred. The measurement of this difference as a function of the buffer gas pressure provided a method of determining the cross-sections of the polarization transfer. Values of the cross-sections are 22, 24, 26, 20, 23 Å² for the buffer gases He, Ne, Ar, Kr, Xe, respectively. A preliminary investigation shows that the sign of the polarization transferred is reversed when the vapour is exposed to a strong magnetic field acting along the incident light beam.

I. Einleitung

Die Übertragung von Polarisation bei atomaren Stößen 2. Art wurde bereits in mehreren Fällen nachgewiesen¹⁻³. All diesen Fällen war gemeinsam, daß die Polarisation vom gestoßenen Atom auf den Stoßpartner überging. Demgegenüber interessiert uns hier die Frage, ob auch Polarisation beim stoßinduzierten Übergang zwischen Zuständen des gleichen Atoms übertragen wird, wobei der Stoßpartner keine Zustandsänderung erfährt. Ein Beispiel bieten die sensibilisierenden Stöße von angeregten Natriumatomen mit Edelgasatomen. Ein in einem der 3p²*P*-Zustände befindliches Natriumatom wird bei einem gaskinetischen Stoß mit statistischer Häufigkeit in den anderen 3p²*P*-Zustand überführt. Die Wirkungsquerschnitte für diese Zustandsumwandlung wurden nach der optischen Methode der sensibilisierten

Gough, W.: Proc. Phys. Soc. (London) 90, 287 (1967).

² Haroche, S., Cohen-Tannoudji, C.: Phys. Rev. Letters 24, 974 (1970).

³ Dodsworth, B., Omont, A.: Phys. Rev. Letters 24, 198 (1970).

Fluoreszenz bereits von mehreren Autoren gemessen⁴⁻⁶. All diesen Wirkungsquerschnitten war gemeinsam, daß sie – bedingt durch die Polarisationsunempfindlichkeit der verwendeten optischen Meßanordnungen – nichts darüber aussagen konnten, ob alle stoßinduzierten Übergänge zwischen definierten Zeemantermen des Anfangs- und des Endzustands gleichwahrscheinlich sind oder ob einige Kombinationen häufiger vorkommen als andere. Die Frage nach der Gleichheit oder Verschiedenheit der Übergangswahrscheinlichkeiten zwischen definierten Zeemantermen ist äquivalent der Frage nach der Übertragung von Tensorpolarisation verschiedener Stufen zwischen Anfangs- und Endzustand. Da im $2p \, {}^2P_{1/2}$ -Zustand keine höhere als (magnetische) Vektorpolarisation denkbar ist, vereinfacht sich unser Problem auf den Nachweis der Übertragung von Vektorpolarisation.

Daß eine solche Übertragung stattfinden sollte, wird bereits durch ein sehr vereinfachtes Modell des Stoßvorgangs vorhergesagt. Schätzen wir zunächst aus dem Radius der Wirkungssphäre sensibilisierender Stöße und der mittleren Relativgeschwindigkeit von Natrium- und mittelschweren Edelgasatomen die Stoßdauer ab, so finden wir die Größenordnung 10^{-12} s. Die zur Dublettaufspaltung der $3p^{2}P$ -Terme gehörige Periode der Spin-Bahn-Präzession ist dem gegenüber $2.7 \cdot 10^{-11}$ s. Hieraus schließt man, daß der Spin in den 3p²P-Zuständen während des Stoßes nur einen Bruchteil eines vollen Umlaufs um den Gesamtdrehimpuls J präzediert; er ruht also quasi. Da auch das molekülelektrische Feld zwischen den Stoßpartnern primär nur auf den Bahndrehimpuls einwirkt, nicht aber auf den Spin, sind wir zu der Hypothese berechtigt, daß der Spin während des ganzen Stoßes seine Orientierung beibehält. Lediglich der Bahndrehimpuls wird desorientiert, und zwar mag man mangels eines besseren Modells annehmen, daß er in isotroper Weise desorientiert wird, also nach dem Stoß mit gleicher Wahrscheinlichkeit in gleichen Raumwinkelelementen beliebiger Orientierung zu finden ist ("L-randomiziation"^{7,8}). Nach Ablauf eines solchen Stoßes sind die Quantenzahlen J, M_I des Anfangzustandes zerstört. Im auslaufenden Zustandsgemenge sind auch alle Zeemanzustände des anderen Dublett-Terms enthalten. Das Absolutquadrat ihrer Amplituden gibt die relative Übergangswahrscheinlichkeit in diese Zustände hininein an. Sie werden in Tabelle 1 mitgeteilt.

Was ergibt sich nach diesem Modell für die Übertragung von Polarisation? Betrachten wir ein in einem Zeemanzustand des ${}^{2}P_{1/2}$ -Terms be-

⁴ Seiwert, R.: Ann. Physik, 7. Fol. 18, 54 (1956).

⁵ Jordan, J. A., Franken, P. A.: Phys. Rev. 142, 20 (1966).

⁶ Pitre, J., Krause, L.: Can. J. Phys. 45, 2671 (1967).

⁷ Franz, F. A., Franz, J. R.: Phys. Rev. 148, 82 (1966).

⁸ Elbel, M.: Ann. Physik, 7. Fol. 22, 289 (1969).

$J, M_J \rightarrow J', M_{J'}$	$W(JM_J \rightarrow J'M_{J'})$		3. Rahmen-
	1. <i>L</i> -random- ization	2. adiabatische <i>L</i> -Depolarisation	übergangs- wahrschein- lichkeiten
	"Sensibilisieren	nde" Übergänge	
<u> ¹/₂ ± ¹/₂ → ³/₂ ∓ ³/₂</u>	6/21	8/45	4 <i>a</i> ₂
$\frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \rightarrow \frac{3}{2} + \frac{1}{2}$	5/21	6/45	$a_1 + 3a_2$
$\frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \rightarrow \frac{3}{2} \pm \frac{1}{2}$	4/21	4/45	$2a_1 + 2a_2$
$\frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \rightarrow \frac{3}{2} \pm \frac{3}{2}$	3/21	2/45	$3a_1 + a_2$
	"Depolarisierer	nde" Übergänge	
$\frac{3}{2} \pm \frac{3}{2} \rightarrow \frac{3}{2} \pm \frac{3}{2}$	0	0	0
$\frac{3}{2} \pm \frac{3}{2} \rightarrow \frac{3}{2} + \frac{1}{2}$	3/27	4/45	2 <i>a</i> ₂
$\frac{3}{2} \pm \frac{3}{2} \rightarrow \frac{3}{2} \pm \frac{1}{2}$	6/27	4/45	$6a_1 + 2a_2$
$\frac{3}{2} \pm \frac{1}{2} \rightarrow \frac{3}{2} + \frac{1}{2}$	4/27	0	8 <i>a</i> 1
$\frac{1}{2} \pm \frac{1}{2} \rightarrow \frac{1}{2} + \frac{1}{2}$	4/27	0	8 <i>a</i> ₁

Tabelle 1. Übergangswahrscheinlichkeiten $W(JM_J \rightarrow J'M'_J)$ zwischen Zeemantermen der 3p²P-Zustände des Natriums bei Stößen mit Edelgasatomen nach verschiedenen Stoßmodellen

findliches Atom. Der Spin ist hier wesentlich antiparallel zu J orientiert. Wird L durch einen Stoß vollständig depolarisiert, so ergibt sich ein Zustandsgemenge, welches polarisiert ist wie der Spin, also entgegengesetzt zum J des Anfangszustands. Der Anteil des ${}^2P_{3/2}$ -Zustands daran ist entgegengesetzt zum J des Anfangszustands orientiert, weil der Gesamtdrehimpuls und der Spin im ${}^{2}P_{3/2}$ -Zustand einander parallel sind. Dies kommt aber einer Übertragung von Polarisation vom Anfangs- auf den Endzustand gleich, wobei das Vorzeichen umgekehrt wird. Eine noch effektivere Übertragung von Polarisation, ebenfalls unter Vorzeichenumkehr, ergab sich auch nach dem Modell adiabatischer L-Depolarisation, welches in zwei früheren Arbeiten der Verfasser^{9,10} behandelt wurde. Überhaupt scheint die Übertragung von Polarisation bei Vorzeichenumkehr eine Konsequenz der Hypothese des "ruhenden" Spins zu sein. In Tabelle 1 sind die nach beiden Modellen berechneten Übergangswahrscheinlichkeiten zum Zwecke des Vergleichs einander gegenübergestellt.

In einer dritten Spalte sind die von Grawert¹¹ aus Erhaltungssätzen der S-Matrix geschlossenen Rahmenübergangswahrscheinlichkeiten,

⁹ Elbel, M., Naumann, F.: Z. Physik 204, 501 (1967); 208, 104 (1968).

¹⁰ Elbel, M., Schneider, W.: Proceedings of the OPaLS-Conference, Warsaw (1968). 11 Grawert, G.: Z. Physik 225, 283 (1969).



Fig. 1. Zeemantermschema der Na-D-Linien für den Fall des abgekoppelten Kerndrehimpulses. Die durchgezogenen Linien stellen optische Übergänge, die gestrichelten Linien stellen Stoßübergänge dar. Die Strichstärke gibt ein Maß für die jeweiligen Übergangswahrscheinlichkeiten

welche die Übergangswahrscheinlichkeiten der erstgenannten Modelle erwartungsgemäß implizieren, zusammengestellt.

Die obigen Überlegungen gehen von einem kernspinlosen Natriumatom aus. Das Vorhandensein eines Kernspins I (Na²³; I=3/2) hat die Aufspaltung der Dublett-Terme in eine Anzahl von Hyperfeinstrukturtermen zur Folge, welche durch die Quantenzahlen J, F, M_F charakterisiert werden, Für die Voraussage, wie in diesem Fall Polarisation bei sensibilisierenden Stößen $J \rightarrow J'$ übertragen wird, wird nun entscheidend, eine Hypothese über das Verhalten des Kernspins während des Stoßvorgangs zu treffen. Da die Kernspinpräzession um F noch viel langsamer erfolgt als die Spinpräzession um J, muß man annehmen, daß, wenn schon der Spin während des Stoßes "ruht", dies in noch viel höherem Maße für den Kernspin zutrifft. Wird aber bei einem Stoße nur L desorientiert, so kann wegen L=1 auch der Gesamtdrehimpuls um höchstens zwei Richtungsquanten desorientiert werden, also folgt $|\Delta M_F| \leq 2$. Das genügt aber z. B. nicht, um bei einem Übergang zwischen Termen mit hohem F, etwa J=1/2, $F=2 \rightarrow J'=3/2$, F'=3, eine im Anfangszustand vorhandene Polarisation bei der Übertragung umzukehren. Da den großen F-Werten das höchste statistische Gewicht zukommt, schließen wir, daß im Falle starker Hyperfeinstrukturwechselwirkung Polarisation unter Erhaltung des Vorzeichens übertragen wird. Quantitative Rechnungen mit Hilfe der von den Verfassern in ¹⁰ mitgeteilten Stoßübergangswahrscheinlichkeiten zwischen Hyperfeinzeemantermen bestätigen diese Voraussage durchaus.

Zur Erzeugung und Messung von Polarisation in den angeregten Termen eignet sich ein 1927 von Hanle¹² angegebenes Verfahren. Dabei wird durch Absorption von D_1 - oder D_2 -Licht der Polarisation σ^+ (oder σ^-) eine Polarisation $\langle J_z \rangle$ im $3p \, {}^2P_{1/2}$ - oder $3p \, {}^2P_{3/2}$ -Zustand erzeugt. Das von den Termen in Rückwärtsrichtung reemittierte, resonante Fluoreszenzlicht enthält ungleiche Anteile von σ^+ - und σ^- -Licht (dabei ist das Auftreten von σ^- -Licht eine unmittelbare Folge der Hyperfeinwechselwirkung). Es zeigt sich, daß die Differenz der σ^+ - und der σ^- -Intensität im Fluoreszenzlicht der Polarisation $\langle J_z \rangle$ des betreffenden angeregten Terms proportional ist.

Ein Experiment zum Nachweis der Übertragung von Polarisation bei sensibilisierenden Stößen läßt sich hierauf wie folgt aufbauen. Natriumdampf wird durch Bestrahlen mit $D_1\sigma^+$ -Licht angeregt. Die im angeregten Zustand erzeugte Polarisation äußert sich durch das Auftreten ungleicher Anteile von $D_1\sigma^+$ - und $D_1\sigma^-$ -Licht in der Resonanzfluoreszenz. Bei Zugabe von Fremdgasen erscheint die D_2 -Linie im Fluoreszenzlicht. In dem in Rückwärtsrichtung abgestrahlten D_2 -Licht wird der σ^+ - und der σ^- -Anteil getrennt gemessen. Sind die in Tabelle 1, Spalte 1 oder 2 angegebenen Stoßübergangswahrscheinlichkeiten zutreffend, dann werden im D_2 -Fluoreszenzlicht mehr σ^- - als σ^+ -Quanten vorhanden sein. Dieser Fall gilt jedoch nur für ein hypothetisches Alkaliatom ohne Kernspin. Ist ein Kernspin und mit ihm eine Hyperfeinstruktur vorhanden, welche mindestens der natürlichen Termbreite gleichkommt, dann werden wir umgekehrt mehr σ^+ - als σ^- -Quanten im sensibilisierten Fluoreszenzlicht erwarten.

Diesem letzteren Fall ist die nachstehende Untersuchung gewidmet. Es sei aber hier schon angemerkt, daß sich der Fall fehlenden Kernspins praktisch durch Abkoppeln desselben in einem starken, zur Einstrahlungsrichtung parallelen Magnetfeld realisieren läßt. Diesen Fall wollen wir einer späteren Untersuchung vorbehalten.

II. Experimentelles

Der Versuchsaufbau, den Fig. 2 zeigt, ist bis auf die zusätzliche, getrennte Anregungs- und Beobachtungsmöglichkeit der beiden Na-D-Linien im Prinzip der gleiche, wie ihn Hanle¹² beschrieben hat. Die Trennung der D-Linien wurde durch je ein Lyot-D-Filter der Firma Halle Berlin erreicht. Bei einer sorgfältigen Thermostatisierung der Filter erfolgt die Trennung bei diesen Filtern bis auf 0,2 bzw. 0,5%, wie Messungen mit einem Spektralapparat ergeben haben. Weiterhin hat sich gezeigt, daß die Filter für D_1 - und D_2 -Licht die gleiche maximale Transparenz besitzen. Das bessere Filter wurde im Anregungsstrahlen-12 Hanle, W.: Z. Physik **41**, 164 (1927).



Fig. 2. Schematischer Aufbau der Apparatur. A Na-Hf-Lampe; L1, L2 Abbildungslinsen; LF1, LF2 Lyot-D-Filter; C Chopper mit einem Seitenzweig zur Erzeugung eines phasengleichen Referenzsignals (30 Hz); LP Linearpolarisator; O Heißluftofen; Z Resonanzzelle aus Glas mit Lichtfalle, thermostatisiertem Seitenarm und Anschluß zur Glasvakuumapparatur; B Blenden zur Ausblendung eines schmalen Beobachtungsstrahls; PM Photomultiplier 1P22; H_0 Magnetfeld; α Beobachtungswinkel $\alpha = 30^{\circ}$

gang eingesetzt. Beim Aufbau des Experiments wurden die üblichen Bedingungen für Fluoreszenzlichtuntersuchungen (Mitchell und Zemansky¹³) eingehalten. Die Resonanzzelle befand sich in einem Heißluftofen, dessen Temperatur auf ±1 °C konstant gehalten werden konnte. In einen Seitenarm der Zelle wurde ein Na-Spiegel im Hochvakuum eindestilliert. Die Temperatur des Spiegels konnte über einen Ölthermostaten auf ±0,1 °C konstant gehalten werden. die Temperatur des Spiegels betrug 110 °C und war damit nach Kibble et al.¹⁴ niedrig genug, um eine störende Verlängerung der Lebensdauer der angeregten Zustände durch Strahlungsdiffusion zu verhindern. Um ein Beschlagen der Zellwände mit einem Na-Spiegel zu verhindern, wurde die Ofentemperatur auf die etwas höhere Temperatur von 115 °C eingestellt. Die Zelle hatte einen Durchmesser von 6 cm. Sie war mit einer Vakuumapparatur aus Glas verbunden, von der aus sie mit den verschiedenen Edelgasen gefüllt werden konnte. Zur Anregung des Na-Dampfes wurde das Licht einer thermostatisierten Na-Hf-Lampe benutzt, deren Temperatur so eingestellt war, daß die emittierten D-Linien ein im Absorptionsbereich quasi kontinuierliches Linienprofil zeigten. Wir regten mit

¹³ Mitchell, Zemansky: Resonance radiation and excited atoms. Cambridge: University Press 1961.

¹⁴ Kibble, B. P., Copley, G., Krause, L.: Phys. Rev. 153, 9 (1967).



Fig. 3a-e. Abhängigkeit des Signals der rechts- bzw. linksdrehenden $D_{1,2}$ -Komponenten vom Fremdgasdruck bei $D_1 \sigma^+$ -Anregung und $H_0=0$ für folgende Fälle: a Fremdgas Helium, b Fremdgas Neon, c Fremdgas Argon, d Fremdgas Krypton, e Fremdgas Xenon

 $D_1 \sigma^+$ -Licht an, welches wir mit Hilfe des *D*-Filters und des Zirkularpolarisators im Anregungsstrahlengang erzeugten. Zusätzlich wurde das anregende Licht durch einen Chopper periodisch unterbrochen (30 Hz), der gleichzeitig ein phasengleiches Referenzsignal für einen Lock-in-Detektor lieferte. Beobachtet wurde unter einem Winkel von 30° zur Einstrahlungsrichtung. Mit Blenden wurde ein feiner Beobachtungsstrahl ausgeblendet, so daß nur Dampf in einem Bereich bis ca. 5 mm von der Zellenwand entfernt beobachtet wurde. In einem Blindversuch bei kalter Zelle wurde sichergestellt, daß kein von den Zellen- und Ofenwänden reflektiertes Licht zur Beobachtung gelangen konnte. Das



Fluoreszenzlicht durchsetzte einen Zirkularanalysator, ein weiteres *D*-Filter und einen Lichtleiter, bevor es auf die Photokathode eines Photomultipliers 1 P 22 traf. Das Multipliersignal wurde mit einem Lock-in-Detektor phasenempfindlich gleichgerichtet und über eine digitale Ausgabeeinheit auf Lochstreifen registriert. Längs der Einstrahlrichtung ließ sich mit einem Helmholtz-Spulenpaar ein Magnetfeld H_0 bis 1200 Gauß erzeugen. Gemessen wurde die Intensität der vier Komponenten der beiden *D*-Linien beiderlei Drehsinns in Abhängigkeit vom Druck des jeweils als Puffergas dienenden Edelgases, und zwar zunächst für den Fall $H_0=0$.

Der Puffergasdruck konnte mit Hilfe eines Aneroidbarometers auf 0,05 Torr genau gemessen werden.

Die Fig. 3a-e zeigen die Meßergebnisse für die fünf Edelgase. Aufgetragen sind die Intensitäten der Fluoreszenzlichtkomponenten $D_1, r; D_1, l; D_2, r$ und D_2, l gegen den Puffergasdruck. Die Indizes r und l weisen darauf hin, daß das Detektorsystem auf rechts- bzw. linksdrehendes Licht empfindlich war. Intensitäten aus r- und l-Messungen können nun nicht ohne weiteres als σ^+ - resp. σ^- -Intensitäten angesehen werden, denn wegen des Beobachtungswinkels $\alpha = 30^{\circ}$ gegen die vollkommene Rückwärtsrichtung tritt das σ^+ - resp. σ^- -Licht bereits elliptisch polarisiert auf. Gemessen wird davon mit dem Zirkularanalysator die ganze zirkulare und die Hälfte der linearen Komponente. Über die lineare Komponente erfolgt sogar vermischter Nachweis von σ^+ - und σ -Licht. Zudem überlagert sich auch noch π -Licht, welches unter dem Winkel $\alpha = 30^{\circ}$ zur Rückwärtsrichtung schon merklich auftritt, der rund der *l*-Messung mit gleichen Anteilen. Man überlegt sich jedoch leicht, daß unvollkommener Nachweis des σ -Lichts und Beimischung von π -Licht die Gültigkeit der folgenden Beziehung, auf die es bei der Auswertung in Kapitel 3 ausschließlich ankommt, nicht beeinträchtigen.

$$\frac{I_{D_2\sigma^+} - I_{D_2\sigma^-}}{I_{D_1\sigma^+} - I_{D_1\sigma^-}} = \frac{I_{D_2, r} - I_{D_2, l}}{I_{D_1, r} - I_{D_1, l}}.$$

Soviel zu den Unvollkommenheiten, die sich aus dem Beobachtungswinkel α ergeben.

Ein weit größeres Problem stellt die Korrektur der *D*-Filterfehler dar. Man sollte ja erwarten, daß bei verschwindendem Puffergasdruck auch beide D_2 -Lichtkomponenten verschwinden sollten. Tatsächlich wird ein gewisser bleibender Rest von D_2 -Licht beobachtet, wobei es sich mindestens z.T. um D_1 -Licht handelt, welches auf Grund des Filterfehlers durch das D_2 -Filter im Nachweisstrahlengang hindurchtritt. Das Verhältnis 2,03 des *r*- und des *l*-Anteils dieses Restes paßt dabei viel besser zu dem entsprechenden Verhältnis 1,85 aus der D_1 -Resonanzfluoreszenzmessung als zu dem entsprechenden Verhältnis 3,61 aus der D_2 -Resonanzfluoreszenzmessung. Hieraus schlossen wir, daß annähernd der ganze Rest auf D_1 -Resonanzfluoreszenz zurückzuführen sei und brachten demzufolge bei allen D_2 -Meßwerten einen durch die Messung bei verschwindendem Puffergasdruck festgelegten Anteil des entsprechenden D_1 -Meßwerts in Abzug. Alle Kurven in Fig. 3a-e sind dementsprechend korrigiert.

III. Auswertung

Die Auswertung der in Abschnitt II mitgeteilten Meßresultate basiert auf dem Theorem, wonach die Differenz der Intensitäten I_{σ^+} und I_{σ^-} jeder der beiden *D*-Linien im Fluoreszenzlicht proportional ist zum Erwartungswert $\langle J_z \rangle$ des jeweiligen oberen Terms. Zum Beweis gehen wir von den Ausdrücken aus, denen nach der Theorie spontaner elektrischer Dipolstrahlung $I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}$ proportional ist, nämlich

$$I_{\sigma^{+}} - I_{\sigma^{-}} \propto \sum_{F, M_{F}} \rho_{J, F, M_{F}} \sum_{F', M_{F'}} \langle \langle J, F, M_{F} | x + iy | J', F', M_{F'} \rangle$$

$$\cdot \langle J', F', M_{F'} | x - iy | J, F, M_{F} \rangle$$

$$- \langle J, F, M_{F} | x - iy | J', F', M_{F'} \rangle$$

$$\cdot \langle J', F', M_{F'} | x + iy | J, F, M_{F} \rangle), \qquad (1)$$

wobei J, F, M_F die Quantenzahlen der Hyperfeinzeemanterme des angeregten, $J', F', M_{F'}$ die Quantenzahlen der Hyperfeinzeemanterme des Grundzustands bedeuten. Da die Summe über die Hyperfeinzeemanterme des Grundzustands vollständig ist, kann man den Ersatzoperatorformalismus anwenden und die Komponenten des Radiusvektors durch die entsprechenden Komponenten des Bahndrehimpulses ersetzen.

$$I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-} \propto \sum_{F, M_F} \rho_{J, F, M_F} \langle J, F, M_F | L_+ L_- - L_- L_+ | J, F, M_F \rangle, \quad (2)$$

$$\propto \sum_{F, M_F} \rho_{J, F, M_F} \langle J, F, M_F | L_z | J, F, M_F \rangle,$$
(3)

$$I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-} \propto \frac{J(J+1) + L(L+1) - S(S+1)}{2J(J+1)}$$

$$\cdot \sum_{F, M_F} \rho_{J, F, M_F} \langle J, F, M_F | J_z | J, F, M_F \rangle,$$
(4)

$$\propto \begin{cases} \frac{2L}{2L+1} \langle J_z \rangle_{J=L+1/2} \\ \frac{2L+2}{2L+1} \langle J_z \rangle_{J=L-1/2}. \end{cases}$$
(5)

Aus Gl. (5) folgt im vorliegenden Fall die wichtige Relation:

$$\frac{I_{D_2\sigma^+} - I_{D_2\sigma^-}}{I_{D_1\sigma^+} - I_{D_1\sigma^-}} = \frac{1}{2} \frac{\langle J_z \rangle_{J=3/2}}{\langle J_z \rangle_{J=1/2}}.$$
 (6)

Die zeitliche Entwicklung von $\langle J_z \rangle_{3/2}$ wird durch die Bilanzgleichung

$$\frac{d\langle \boldsymbol{J}_{z}\rangle_{3/2}}{dt} = N v_{r} \sigma_{\text{poltrans}} \langle \boldsymbol{J}_{z}\rangle_{1/2} - \left(\frac{1}{\tau} + N v_{r} \sigma_{\text{relax}}\right) \langle \boldsymbol{J}_{z}\rangle_{3/2}$$
(7)

bestimmt, deren stationäre Lösung

$$\frac{\langle \boldsymbol{J}_z \rangle_{3/2}}{\langle \boldsymbol{J}_z \rangle_{1/2}} = \frac{\tau \, N \, v_r \, \sigma_{\text{poltrans}}}{1 + \tau \, N \, v_r \, \sigma_{\text{relax}}} \tag{8}$$

ist. σ_{poltrans} bedeutet hier den Wirkungsquerschnitt für Übertragung von Polarisation $\langle J_z \rangle$ vom ${}^2P_{1/2}$ - zum ${}^2P_{3/2}$ -Zustand und σ_{relax} denjenigen für die Relaxation von $\langle J_z \rangle_{3/2}$. N bedeutet die Teilchenzahldichte des Fremdgases, v_r die mittlere Relativgeschwindigkeit, τ die mittlere Lebensdauer der angeregten Zustände durch spontane Emission. Aus Gln. (6) und (8) folgt

$$\frac{1}{2} \cdot \frac{\tau N v_r \sigma_{\text{poltrans}}}{1 + \tau N v_r \sigma_{\text{relax}}} = \frac{I_{D_2 \sigma^+} - I_{D_2 \sigma^-}}{I_{D_1 \sigma^+} - I_{D_1 \sigma^-}} = :V.$$
(9)

Die Auftragung des Verhältnisses (V) der Intensitäten auf der linken Seite von Gl. (9) gegen die Teilchenzahldichte N oder die zu ihr proportionale Größe des Druckes ergäbe zufolge Gl. (9) eine Kurve, die mit der Steigung

$$\left(\frac{dV}{dp}\right)_{p=0} = \frac{1}{2} \frac{v_r \sigma_{\text{poltrans}} \tau}{kT}$$
(10)

im Ursprung des V/p-Koordinatensystems beginnt, um sich bei steigenden Drucken monoton der Asymptote

$$(V)_{\rm grenz} = \frac{1}{2} \frac{\sigma_{\rm poltrans}}{\sigma_{\rm relax}}$$
(11)

anzunähern. Man wäre somit in der Lage, aus der Anfangssteigung zunächst σ_{poltrans} zu bestimmen und dann aus der Lage der Asymptote σ_{relax} daran anzuschließen. Nur der erste Teil dieses Verfahrens läßt sich durchführen, denn, wie Fig. 4 zeigt, entspricht die Meßkurve nicht der theoretischen Vorhersage, indem sie bei hohen Drucken nach Erreichen



Fig. 4. Abhängigkeit des Verhältnisses $V = (I_{D_2\sigma^+} - I_{D_2\sigma^-})/(I_{D_1\sigma^+} - I_{D_1\sigma^-})$ vom Fremdgasdruck (für Neon)

eines Maximums wieder auf Null abklingt. Es hat demnach den Anschein, als ob das Verhältnis $\sigma_{poltrans}/\sigma_{relax}$ selber druckabhängig sei, was zunächst bestürzen könnte. Eine mögliche Erklärung dieses Umstandes wäre in der sehr engen Hyperfeinstruktur des ${}^{2}P_{3/2}$ -Zustands zu suchen, die in der Tat wenig weiter als die natürliche Termbreite ist. In diesem Fall werden bereits bei wenigen Torr Fremdgasdruck die mittleren Intervalle zwischen aufeinanderfolgenden Stößen so kurz, daß während derselben J und I auch nicht eine Präzision um F vollenden können, d. h. durch den vorangegangenen Stoß geschaffener Kohärenzen zwischen Termen mit verschiedenem F sind noch nicht abgeklungen, wenn der nächste Stoß erfolgt. Im Grenzfall sehr rasch aufeinanderfolgender Stöße würde überhaupt die Kopplung von I und J völlig aufgehoben und nur noch J von der desorientierenden Wirkung der Stöße betroffen werden.

Wegen dieser Verkomplizierung der Interpretation unserer Messungen haben wir davon Abstand genommen, σ_{relax} zu bestimmen. Lediglich $\sigma_{poltrans}$ wurde aus der Anfangssteigung der Auftragungen gemäß Fig. 4 gewonnen. Sie werden in Tabelle 2 den gewöhnlichen sensibilisierenden Wirkungsquerschnitten Q_1 früherer Autoren gegenübergestellt.

Wir hatten bereits in der Einleitung bemerkt, daß bei Abkopplung des Kernspins im ausreichend hohen, zur Einstrahlungsrichtung parallelen Magnetfeld die Polarisationsübertragung unter Vorzeichenumkehr vor sich geht, so daß bei Anregung mit $D_1\sigma^+$ -Licht hier in der sensibilisierten Fluoreszenz mehr $D_2\sigma^-$ - als $D_2\sigma^+$ -Licht auftreten sollte. Wir

18 Z. Physik, Bd. 241

	$\sigma_{\rm poltrans}({\rm \AA}^2){\cal Q}_1({\rm \AA}^2)^6$		$Q_1(\text{\AA}^2)^5$
Na-He	22	86,0	77
Na-Ne	24	67,0	68
Na-Ar	26	109,9	121
Na-Kr	20	85,0	128
Na-Xe	23	89,8	116

Tabelle 2. Wirkungsquerschnitt σ_{poltrans} für die stoßinduzierte Übertragung von Polarisation $\langle J_z \rangle$ vom Zustand $3p^2 P_{1/2}$ zum Zustand $3p^2 P_{3/2}$ des Natriums. Wir schätzen den Fehler von σ_{poltrans} auf $\pm 20\%$



Fig. 5. Abhängigkeit der Fluoreszenzlichtkomponenten D_1 , l; D_1 , r; D_2 , l und D_2 , r von der Stärke eines zur Einstrahlungsrichtung parallelen Magnetfelds bei $D_1 \sigma^+$ -Anregung und einem Heliumdruck von 1 Torr

erwarten also bei Anlegen eines Magnetfelds Inversion des Signals $I_{D_2\sigma^+} - I_{D_2\sigma^-}$. Obwohl wir die Erforschung dieses Falls einer späteren Arbeit vorbehalten wollen, zeigen wir doch das vorläufige Resultat eines solchen Experiments in Fig. 5. Aufgetragen ist $I_{D_1,r}$, $I_{D_1,l}$, $I_{D_2,r}$ und $I_{D_2,l}$ gegen die Stärke des longitudinalen Magnetfelds; $I_{D_2,r}$ und $I_{D_2,l}$ zeigen die vorhergesagte Inversion.

Bei 34 Oe schneiden sich die $I_{D_2,r}$ - und $I_{D_1,r}$ -Kurven. Hier ist keine Übertragung von Polarisation möglich. Erwähnenswert ist auch das Absinken der $I_{D_2,r}$ -Komponente mit wachsendem Magnetfeld, das die Abkopplung des Kernspins im ${}^2P_{1/2}$ -Zustand anzeigt.

IV. Zusammenfassung

Die Übertragung von Polarisation bei sensibilisierenden Stößen zwischen den 3p²P-Zuständen des Natriums wurde durch getrennte Beobachtung der zirkular polarisierten Komponenten des Fluoreszenzlichts $D_1\sigma^+$, $D_1\sigma^-$, $D_2\sigma^+$ und $D_2\sigma^-$ nachgewiesen. Ein Wirkungsquerschnitt für die Übertragung von Polarisation $\langle J_z \rangle$ wurde definiert und Werte desselben für die verschiedenen Edelgase aus den Messungen hergeleitet. Durch Anlegen eines magnetischen Feldes parallel zur Einstrahlungsrichtung wird der Kernspin entkoppelt und die für diesen Fall theoretisch vorhergesagte Inversion der übertragenen Polarisation tatsächlich beobachtet. Auffällig bleibt, daß mit steigendem Druck die übertragene Polarisation schneller verschwindet, als sich durch die gleichzeitig stattfindende Stoßdepolarisation motivieren läßt. Anzumerken ist ferner, daß die Übertragung von Polarisation auch zwischen präzedierenden Polarisationsvektoren nachgewiesen wurde und daß in Kooperation mit Prof. L. Krause und B. Niewitecka, Windsor, Kanada, dieses als "Hanleeffekt in der sensibilisierten Fluoreszenz" gedeutete Phänomen näher erforscht wurde¹⁵.

Die Autoren danken Herrn Prof. Walcher für sein förderndes Interesse an dieser Arbeit und der Deutschen Forschungsgemeinschaft für apparative Unterstützung.

15 Elbel, M., Niewitecka, B., Krause, L.: Erscheint demnächst in Can. J. Phys.

Doz. Dr. M. Elbel Stud.-Ref. W. Schneider Physikalisches Institut der Universität Marburg BRD-3550 Marburg a. d. Lahn, Renthof 5 Deutschland