

Optisches Pumpen an Mangan

A. ASSFALG, J. FRICKE, J. HAAS, R. TILGNER und E. LÜSCHER

Physik-Department der Technischen Universität München

(Z. Naturforsch. **26 a**, 1567—1570 [1971]; eingegangen am 2. Juni 1971)

The $^6S_{5/2}$ ground state of Mn⁵⁵ was polarized by spin exchange collisions with an optically pumped Cs-vapour. The rf induced transitions between Zeeman sublevels of Mn were detected as a change in the Cs pumping light transmission. To estimate the effectiveness of direct optical pumping or of detection with resonance light the absorption probabilities for circularly polarized light are given as functions of $\langle S_z \rangle$.

I. Einleitung

Bis jetzt wurde von drei Experimenten berichtet, bei denen es gelang, einen Dampf von Atomen mit unaufgefüllten inneren Schalen durch optisches Pumpen zu polarisieren: OLSCHEWSKI und OTTEN¹ orientierten einen Yb-Dampf durch Bestrahlen mit zirkularpolarisiertem Resonanzlicht; TILGNER, FRICKE und HAAS² polarisierten einen Eu-Dampf durch Spinaustausch mit einem optisch gepumpten Cs-Dampf. Neben diesen Atomen existiert noch ein weiteres Atom mit nicht aufgefüllter innerer Schale, das einen S-Grundzustand hat, und daher kleine Relaxationsquerschnitte bei Stößen eines orientierten Atoms mit einem diamagnetischen Puffergasatom erwarten lässt: Mn⁵⁵. Dieses Mn-Isotop ist das einzige natürlich vorkommende; die Elektronenstruktur des Grundzustandes ist $3d^5 4s^2$ a $^6S_{5/2}$, der Kernspin beträgt $I = 5/2$ und der g_F -Faktor hat wegen $I = J$ für alle Hyperfeinniveaus des Grundzustands denselben Wert $1,00076 \pm 0,00002$ (nach CHILDS und GOODMAN³). Bei schwachen Magnetfeldern induziert man daher durch magnetische Resonanz Übergänge zwischen sämtlichen benachbarten Zeemanniveaus des Grundzustands, was für den Nachweis der Polarisation von Vorteil ist.

DAVIS, WRIGHT und BALLING⁴ polarisierten vor kurzem einen Mn-Dampf durch Spinaustausch mit optisch gepumpten Rb-Atomen, um damit die Hyperfeinwechselwirkungs-Konstanten zu bestimmen.

Für direktes optisches Pumpen mit zirkularpolarisiertem Manganlicht kommen die drei D-Linien bei 4034,490 Å (D_0), 4033,073 Å (D_1) und 4030,755 Å (D_2) (Wellenlängen nach⁵) in Frage, die Übergänge in die Zustände $z^6P_{3/2}$, $z^6P_{5/2}$ u. $z^6P_{7/2}$ mit der Konfiguration $3d^5 4s 4p$ entsprechen. Zunächst werden die Absorptionswahrscheinlichkeiten für die einzelnen Zeeman-Niveaus des Grundzustandes bei allen D-Linien berechnet, um die Effektivität des Pumpprozesses abschätzen zu können. Daran schließt sich eine Analyse des Zusammenhangs zwischen der Absorption der Linien durch die einzelnen Zeeman-Niveaus $|F, m_F\rangle$ und den entsprechenden Erwartungswerten des Hüllenspins $\langle S_z \rangle_F^{m_F}$, um die physikalische Natur der Größen, die man durch Absorptionsmessungen an einem Mn-Dampf bestimmt, zu klären.

Aus verschiedenen Gründen bereitet direktes optisches Pumpen mit Mn-Licht Schwierigkeiten; deshalb wurde versucht, den Dampf durch Bestrahlung mit zirkularpolarisiertem Ta-Licht zu polarisieren. Dies sollte möglich sein, da das Tantalspektrum eine Linie bei 4033,069 Å besitzt, deren Abstand von der Mitte der D_1 -Linie des Mn kleiner ist als die beiden Linienbreiten⁶. Wie die Absorptionswahrscheinlichkeiten zeigen (vgl. Abschnitt II), ist die D_1 -Linie zum optischen Pumpen nicht sehr günstig. Ohne sehr schmalbandige Filter, einen Monochromator oder neuerdings Dye-Laser zu verwenden, stellt optisches Pumpen mit der D_1 -nahen Ta-Linie die einzige Möglichkeit

Sonderdruckanforderungen an Prof. Dr. E. LÜSCHER, Physik-Department der Technischen Universität München, D-8046 Garching bei München.

¹ L. OLSCHEWSKI u. E. W. OTTEN, Z. Phys. **200**, 224 [1967].

² R. TILGNER, J. FRICKE u. J. HAAS, Helv. Phys. Acta **42**, 740 [1969].

³ W. J. CHILDS u. L. S. GOODMAN, Phys. Rev. **140**, 447 [1965].

⁴ S. J. DAVIS, J. J. WRIGHT, and L. C. BALLING, Phys. Rev. A, **3**, 1220 (1971).

⁵ M. I. T. Wavelength Tables, Chapman & Hall, London 1939.

⁶ A. ASSFALG, Diplomarbeit TU München 1970.

dar, einen Mn-Dampf direkt optisch zu pumpen, da für die beiden anderen D-Linien keine geeigneten Nachbarn existieren. Es gelang jedoch auf diese Weise nicht, mit den gegebenen experimentellen Möglichkeiten den Dampf zu polarisieren.

Die Methode, Drehimpuls eines direkt optisch gepumpten Cs-Dampfes durch Spinaustausch auf Mn zu übertragen, war jedoch erfolgreich. Der Nachweis wurde dabei durch magnetische Resonanz an Mn und Beobachtung der Intensität des transmittierten Cs-Pumplichts geführt.

II. Absorptionswahrscheinlichkeiten

Der Gesamtspin F nimmt infolge der Hyperfeinwechselwirkung im Grundzustand die Werte 0 bis 5, in den angeregten Zuständen die Werte 0 bis 6 an. Die Absorptionswahrscheinlichkeiten der einzelnen Zeeman-Niveaus des Grundzustandes wurden für rechtszirkularpolarisiertes Licht nach den von CONDON und SHORTLEY⁷ angegebenen Formeln berechnet. Die auf 105 normierten Werte sind in Tab. 1 zusammengestellt. Bei der Berechnung wurde

angenommen, daß keine kohärenten Anregungsprozesse berücksichtigt werden müssen, und daß die Doppler-Breiten der anregenden Linien größer sind als die Hyperfeinaufspaltung der Niveaus. Die Tabelle zeigt, daß zum optischen Pumpen die D_0 -Linie am besten und die D_2 -Linie auch noch recht gut geeignet sein dürfte.

Um aus einer Messung der Absorption der anregenden D_x -Strahlung ($x = 0, 1, 2$) Aussagen über die Polarisation des Ensembles machen zu können, ist es notwendig, die Absorptionswahrscheinlichkeiten a_F^{mf} aller Grundzustandsniveaus $|F, m_F\rangle$ als Funktion von $\langle S_z \rangle_F^{mf}$ darzustellen. Zu diesem Zweck kann man die Absorptionswahrscheinlichkeit a_F^{mf} des Niveaus $|F, m_F\rangle$ als ein Polynom in $\langle S_z \rangle_F^{mf}$ mit $2F + 1$ Koeffizienten schreiben

$$a_F^{mf}(D_x, \sigma^+) = K_0^{(F)}(D_x) + K_1^{(F)}(D_x) \cdot \langle S_z \rangle_F^{mf} + \cdots + K_F^{(F)}(D_x) \cdot (\langle S_z \rangle_F^{mf})^{2F}.$$

Die $\langle S_z \rangle_F^{mf}$ -Werte sind für alle $|F, m_F\rangle$ in Tab. 2 aufgeführt.

Für jedes der $2F + 1$ Zeeman-Niveaus eines Hyperfeinniveaus $|F\rangle$ ergibt sich ein derartiges Polynom mit $2F + 1$ Koeffizienten $K_i^{(F)}$.

Tab. 1. Absorptionswahrscheinlichkeiten für rechtszirkularpolarisierte Mangan — D_0 -, D_1 - und D_2 -Strahlung.

					23,33333				
					35,00000				
					46,66667				
					0				
					26,60000	30,80000	12,60000	D_0	
					44,40000	22,20000	38,40000	D_1	
					34,00000	52,00000	54,00000	D_2	
					—1	0	1		
					34,00000	32,00000	26,66667	18,00000	6,00000
					46,71429	35,14286	29,28571	29,14286	34,71429
					24,28571	37,85714	49,04762	57,85714	64,28571
					—2	—1	0	1	2
					43,94444	37,33333	30,56667	23,64444	16,56667
					44,66667	41,00000	37,60000	34,46667	31,60000
					16,38889	26,66667	36,83333	46,88889	56,83333
					—3	—2	—1	0	1
					56,00000	45,50000	36,00000	27,50000	20,00000
					39,00000	42,00000	43,28571	42,85714	40,71429
					10,00000	17,50000	25,71429	34,64286	44,28571
					—4	—3	—2	—1	0
					70,00000	56,00000	43,55556	32,66667	23,33333
					30,00000	39,00000	45,33333	49,00000	50,00000
					5,00000	10,00000	16,11111	23,33333	31,66667
					—5	—4	—3	—2	—1
						0	1	2	3
							4	3	4
								5	5

⁷ E. U. CONDON u. G. H. SHORTLEY, The Theory of Atomic Spectra, Cambridge University Press, 1964.

Tab. 2. $\langle S_z \rangle_F^{m_F}$ -Werte für die verschiedenen $|F, m_F\rangle$ -Niveaus des Grundzustandes von Mn⁵⁵.

m_F	± 5	± 4	± 3	± 2	± 1	0
5	$\pm \frac{5}{2}$	± 2	$\pm \frac{3}{2}$	± 1	$\pm \frac{1}{2}$	0
4		± 2	$\pm \frac{3}{2}$	± 1	$\pm \frac{1}{2}$	0
3			$\pm \frac{3}{2}$	± 1	$\pm \frac{1}{2}$	0
2				± 1	$\pm \frac{1}{2}$	0
1					$\pm \frac{1}{2}$	0
0						0

Diese Gleichungssysteme wurden für alle Hyperfeinniveaus gelöst. Sämtliche Absorptionswahrscheinlichkeiten für die drei D-Linien können durch in $\langle S_z \rangle_F^{m_F}$ quadratische Polynome dargestellt werden.

Der konstante Term $K_0^{(F)}(D_x)$ der Polynome ist in allen Fällen durch die Absorptionswahrscheinlichkeit $a_F^{m_F=0}(D_x)$ gegeben. Die Rechnungen zeigten, daß $K_1^{(F)}(D_x)$ von F unabhängig ist. $K_1^{(F)}$ hat die Werte:

$$K_1(D_0) = -14, \quad K_1(D_1) = -6, \quad K_1(D_2) = 20.$$

Die Koeffizienten $K_2^{(F)}(D_x)$ sind deutlich F -abhängig; für alle F gilt folgende Beziehung:

$$K_2^{(F)}(D_0) : K_2^{(F)}(D_1) : K_2^{(F)}(D_2) = 7 : (-12) : 5.$$

Man kann daher die Abhängigkeit der $K_2^{(F)}(D_x)$ von der Strahlungsart durch einen Faktor $f(D_x)$ abspalten:

$$K_2^{(F)}(D_x) = f(D_x) q^{(F)}.$$

Wählt man

$$f(D_0) = 7, \quad f(D_1) = 12, \quad f(D_2) = 5,$$

so liefert die Rechnung folgende Werte für $q^{(F)}$:

F	5	4	3	2	1
$q^{(F)}$	0,4444	0,2857	-0,0444	-0,9524	-6,4000

III. Zusammenhang zwischen Absorption von zirkular-polarisiertem Licht und der Hüllenpolarisation

Die Absorption zirkularpolarisierter D_x -Strahlung ist unter den obigen Annahmen gegeben durch

$$A(D_x) = g \sum_F \sum_{m_F} I_F(D_x) a_F^{m_F}(D_x, \sigma^+) n_{F, m_F}. \quad (1)$$

Dabei ist n_{F, m_F} die Besetzungszahl des Niveaus $|F, m_F\rangle$ des Grundzustands, $I_F(D_x)$ die Hyperfeinintensität des Lichtes und g ein Geometriefaktor. Im folgenden soll angenommen werden, daß $I_F(D_x)$ gleich ist für alle Hyperfeinniveaus:

$$I_F(D_x) = I(D_x).$$

Zur weiteren Betrachtung der Absorption wird ein Ansatz für die Besetzungszahlen n_{F, m_F} gemacht. Der quadratische Ansatz

$$n_{F, m_F} = n_F \{1 + x_F \langle S_z \rangle_F^{m_F} + y_F [(\langle S_z \rangle_F^{m_F})^2 - S_F]\} \quad (2)$$

berücksichtigt Polarisation und Ausrichtung des Ensembles; x_F und y_F sind Maße für Polarisation und Alignment. S_F ist eine Konstante, die sich durch die Normierungsbedingungen für die n_{F, m_F} zu

$$S_F = \frac{1}{2F+1} \sum_{m_F} (\langle S_z \rangle_F^{m_F})^2$$

ergibt. Nach einigen Umformungen erhält man:

$$\begin{aligned} A(D_x) &= \sum_F n_F (2F+1) [K_0^{(F)}(D_x) + K_2^{(F)}(D_x) \cdot S_F] \\ &+ K_1(D_x) \cdot \sum_{F, m_F} n_{F, m_F} \langle S_z \rangle_F^{m_F} \\ &+ \sum_F y_F n_F K_2^{(F)}(D_x) \sum_{m_F} (\langle S_z \rangle_F^{m_F})^2 [(\langle S_z \rangle_F^{m_F})^2 - S_F]. \end{aligned} \quad (3)$$

Der Term $K_0^{(F)}(D_x) + K_2^{(F)}(D_x) S_F$ ist, wie die numerische Rechnung ergibt, von F unabhängig, d.h. $K_0^{(F)}(D_x) + K_2^{(F)}(D_x) S_F = C(D_x)$.

Für die einzelnen Strahlungsarten gilt:

$$\begin{aligned} C(D_0) &= 23,333; \quad C(D_1) = 35,000; \\ C(D_2) &= 46,666. \end{aligned}$$

Die Summe $\sum_{F, m_F} n_{F, m_F} \langle S_z \rangle_F^{m_F}$ ist identisch mit der Hüllenpolarisation P des Ensembles; der zweite Term auf der rechten Seite der Gl. (3) ist also unabhängig von dem speziellen Ansatz (2) für n_{F, m_F} . Gl. (3) kann umgeformt werden in:

$$\begin{aligned} A(D_x) &= C(D_x) + K_1(D_x) P \\ &+ \sum_F y_F n_F K_2^{(F)}(D_x) \sum_{m_F} [(\langle S_z \rangle_F^{m_F})^2 - S_F]. \end{aligned}$$

Die Absorption setzt sich daher aus drei Anteilen zusammen: Der Absorption des Systems bei Gleichbesetzung aller Niveaus ($P = y_F = 0$), einem Anteil, der proportional ist zur Polarisation P und einem Term, der von der Ausrichtung des Ensembles abhängt.

Durch Verwendung verschiedener Strahlungsarten und Rechts- und Linkspolarisation können diese einzelnen Beiträge experimentell bestimmt werden.

Ausführliche Analysen des Zusammenhangs zwischen Absorption und Erwartungswerten des Atomdrehimpulses, die irreduzible Tensoroperatoren benutzen, stammen von COHEN-TANNOUDJI und LALOË⁸ und LALOË, LEDUC und MINGUZZI⁹. In der zweiten Arbeit wird gezeigt, daß die Absorption eines Dampfes von Atomen mit S-Grundzuständen und beliebigem Hüllenspin stets durch Polarisations- und Alignmentanteile gegeben ist, höhere Potenzen von $\langle S_z \rangle$ dagegen nie auftreten.

IV. Polarisation der 3d-Schale von Mn durch Spinaustausch mit optisch gepumpten Cs-Atomen

Zur Messung wurde eine konventionelle Pumpanordnung¹⁰ verwendet. Um einen Dampfdruck von etwa 10^{-5} Torr zu erreichen, muß das Mn auf etwa 700 °C erhitzt werden. Dazu diente ein kleines Mo-Rohr, das durch zwei Heizwendeln geheizt und an seinem oberen Ende mit Manganstaub gefüllt wurde (vgl. 2). Das Cs befand sich in einem seitlichen Ansatz der Zelle, die außerdem noch mit etwa 10 Torr Argon als Puffergas gefüllt war.

Der Nachweis der Polarisation des Mn-Dampfes erfolgte mit Lock-in-Technik. Fig. 1 zeigt die Resonanzkurve, die bei einem Magnetfeld von

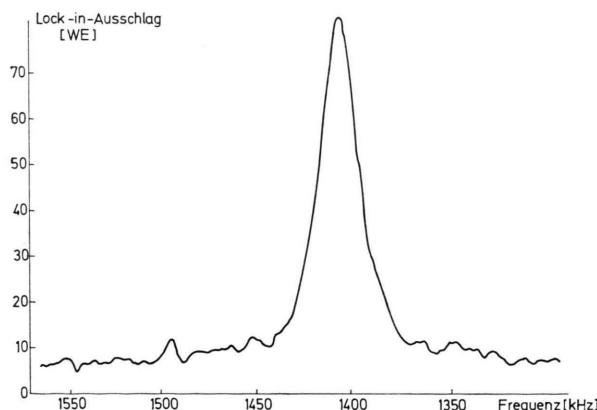


Fig. 1. Mn-Resonanz bei einem Magnetfeld von 10^{-4} Vs/m²
Zeitkonstante: 10 sec.

⁸ C. COHEN-TANNOUDJI u. F. LALOË, J. Phys. **28**, 722 (1967).

⁹ F. LALOË, M. LEDUC u. P. MINGUZZI, J. Phys. **30**, 277 (1969).

etwa 10^{-4} Vs/m² aufgenommen wurde⁶; die Zeitkonstante des Verstärkers betrug 10 sec, der Frequenzbereich von 1300 bis 1550 kHz wurde in etwa 10 Min. überstrichen. Die Halbwertsbreite der Resonanzkurve beträgt etwa 2% der Frequenz des Resonanzmaximums; sie dürfte hauptsächlich in dem inhomogenen Störfeld begründet sein, das von den Heizwendeln erzeugt wird.

Der g_F -Faktor des Cs ist etwa $\frac{1}{4}$, der des Mn ungefähr 1; man könnte daher vermuten, daß es sich bei der gemessenen Mn-Resonanz um einen 4-Quantenübergang des Cs handelt. Dies trifft jedoch nicht zu: Nach einiger Zeit war kein Mangansignal mehr zu sehen (vermutlich war der Mn-Staub verbraucht), das Cs-Resonanzsignal bei 350 kHz war jedoch nach wie vor gleich groß.

Um nun die Eigenschaften polarisierter Mn-Atome — etwa Wirkungsquerschnitte für Spinaustausch mit Cs-Atomen und Depolarisation bei Stößen mit Puffergasatomen — zu untersuchen, gibt es zwei Methoden, bei denen der Mn-Dampf nicht direkt durch Absorption von zirkulärpolarisierter Resonanzlicht polarisiert wird, sondern durch Spinaustausch mit einem direkt optisch gepumpten Dampf (z.B. Cs):

1. Aus der alleinigen Beobachtung der Absorption des Cs-Pumplichts können die verschiedenen Mangandaten ermittelt werden, wie an Hand eines vereinfachten Modells an anderer Stelle gezeigt wurde^{6,11}.

2. Eine Resonanzlichtquelle, die zu schwach ist, um den Mn-Dampf direkt optisch zu pumpen, kann zur Detektion verwendet werden; damit läßt sich auf Grund der Ergebnisse von Abschnitt III u.a. die Polarisation des Mn-Dampfes direkt verfolgen. Die Trennung der verschiedenen Einflüsse, denen das System unterliegt, kann durch ähnliche, auf Modellvorstellungen beruhende Überlegungen⁶ durchgeführt und damit das Modell selbst überprüft werden. Zur Detektion müßte die Intensität der verwendeten Ta-Hohlkathode ausreichend sein.

Wir danken Fr. GORENFLO für die Durchführung der Rechnungen. Dem Bundesministerium für Bildung und Wissenschaft sind wir für die Überlassung von Personal- und Sachmitteln und dem Leibniz-Rechenzentrum der Bayerischen Akademie der Wissenschaft für die Gewährung von Rechenzeit zu Dank verpflichtet.

¹⁰ W. W. HOLLOWAY, E. LÜSCHER u. R. NOVICK, Phys. Rev. **126**, 2109 [1962].

¹¹ A. ASSFALG, J. FRICKE, J. HAAS u. E. LÜSCHER, wird veröffentlicht in Z. Naturforsch.