

Methoden zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten für Spinaustausch und Depolarisation indirekt optisch gepumpter Atome

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

Physik-Department der Technischen Universität München

(Z. Naturforsch. 26 a, 1571—1577 [1971]; eingegangen am 2. Juni 1971)

Two methods are described to derive cross sections for spin exchange and spin depolarization of an indirectly pumped alkali vapor with zero nuclear spin. Either pulsed or sinusoidally modulated radiofrequency can be used to destroy the polarization of the indirectly pumped (secondary) system, while the intensity of the transmitted pumping light is observed. Cross sections follow from the indirectly produced depolarization of the primary system i. e. from the change in pumping light transmission or from the phase angle between the rf modulation and the intensity oscillations of the transmitted light. The quality of the two methods is tested by deriving cross sections for spin exchange between Cs and Rb and for depolarization of Rb in Argon buffer gas.

I. Einleitung

Zur Bestimmung der Wirkungsquerschnitte der verschiedenen Relaxationsprozesse beim optischen Pumpen (Spinaustausch zwischen zwei Alkaliatomen, Depolarisation durch Stöße mit der Wand des Absorptionsgefäßes und durch Stoßprozesse zwischen einem Alkaliatom und einem Puffergasatom) muß der zeitliche Verlauf der Depolarisation, d. h. die Relaxationskurve, gemessen werden. Dazu wurden die von FRANZEN¹ und BOUCHIAT und GROSSETÊTE² angegebenen Verfahren verwendet.

Nach Franzen wird der Dampf bis zur Sättigung optisch gepumpt; dann schaltet man das Pumplicht kurzzeitig ab und läßt den Dampf im Dunkeln relaxieren. Die Intensität des transmittierten Pumplichts zum Zeitpunkt des Wiedereinschaltens ist ein Maß für den momentanen Polarisationsgrad des Systems. Wird nun die „Dunkelzeit“ variiert, so kann man die Relaxationskurve punktweise aufnehmen. Bouchiat und Grossetête verfolgen die Depolarisation des Dampfes während der Dunkelzeit direkt mit Hilfe eines Detektionslichts, das so intensitätsschwach ist, daß es den Relaxationsverlauf nicht verändert. Im Prinzip genügt dann ein einmaliges Abschalten des Pumplichtes, um die Relaxationskurve vollständig aufzuzeichnen. Will man den Wirkungsquerschnitt für Depolarisation eines orientierten Atoms beim Stoß mit einem diamagnetischen Puffergasatom oder der Wand des Gefäßes bestimmen, so muß bei beiden Verfahren der Dampf „direkt“, d. h. durch Einstrahlung von zirkularpolarisiertem Resonanz-

licht, optisch gepumpt werden. Dies bereitet im Fall der Alkaliatome keine Schwierigkeiten, da hierfür leistungsfähige Lichtquellen zur Verfügung stehen. Zum Nachweis der Polarisation des Dampfes durch Beobachtung des transmittierten Lichtes ist es notwendig, daß das eingestrahelte Resonanzlicht nicht alle Feinstrukturkomponenten im natürlichen Intensitätsverhältnis enthält. Diese Bedingung läßt sich bei den Alkalimetallen Cs und Rb bei Verwendung von Interferenzlinienfiltern leicht erfüllen. Oft läßt sich jedoch ohne Verwendung eines Monochromators oder sehr schmalbandiger Filter das natürliche Intensitätsverhältnis der Komponenten nicht genügend stark ändern. Vielfach sind auch die verfügbaren Pumplichtquellen so intensitätsschwach, daß es damit nicht gelingt, den Dampf merklich zu pumpen. In diesem Fall versucht man den Dampf „indirekt“, d. h. durch Spinaustausch mit einem zweiten Metaldampf (meist einem Alkalimetall), zu polarisieren, dessen Polarisation seinerseits direkt mit Resonanzlicht erzeugt und detektiert wird.

In der vorliegenden Arbeit werden zwei Methoden angegeben, um die Relaxationsrate eines indirekt gepumpten Dampfes infolge von Stößen mit Puffergasatomen und der Wand sowie den Spinaustauschwirkungsquerschnitt zu bestimmen.

II. Ratengleichungen

Die Meßverfahren basieren auf einem Modell für Alkaliatome ($S = \frac{1}{2}$), bei dem die Kernspins beider Atomsorten A und B Null sind, d. h. es wird an-

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

¹ W. FRANZEN, Phys. Rev. **115**, 850 [1959].

² M. A. BOUCHIAT u. F. GROSSETÊTE, J. Physique **27**, 353 [1966].

genommen, daß die Optischen-Pump-Signale nur von der Polarisation der Elektronenhülle der Atome abhängen.

GIBBS³ hat den Spinaustausch zwischen zwei realen Alkaliatomen ($S=\frac{1}{2}$, $I>0$) untersucht und die Ergebnisse mit denen verglichen, die man erhält, wenn man den Kernspin vernachlässigt [$(I=0)$ -Modell]. Sie stimmen nur dann überein, wenn der Grundzustand bevorzugt nach dem von FRANZ⁴ angegebenen electron-randomization-Modell relaxiert.

Die Atomsorte A wird durch rechtszirkular polarisiertes D_1 -A-Licht optisch gepumpt. Durch Spinaustausch werden dann auch die B-Atome polarisiert. Der absorbierende A-Dampf soll optisch dünn sein; dann ist die Intensität I_0 des Pumplichts innerhalb der gesamten Absorptionszelle konstant. Die Zelle enthalte außerdem einige Torr eines diamagnetischen Puffergases und befinde sich in einem schwachen Magnetfeld H_0 , das parallel zur Einstrahlungsrichtung des Pumplichtes verlaufe. Senkrecht zu H_0 werde ein magnetisches Wechselfeld $H_1(\omega)$ eingestrahlt, das mit der Zeeman-Resonanzfrequenz ω der B-Atome schwingt.

Die Differentialgleichungen für die zeitlichen Änderungen der Polarisation $a(t)$ bzw. $b(t)$ des A- bzw. B-Ensembles ergeben sich dann folgendermaßen:

Es sei a_+ bzw. b_+ die Zahl der A- bzw. B-Atome pro cm^3 mit $m_s = +\frac{1}{2}$; entsprechend seien a_- und b_- definiert. N_A bzw. N_B sei die Gesamtzahl der A- bzw. B-Atome pro cm^3 ($N_A = a_+ + a_-$, $N_B = b_+ + b_-$). Für die durch

$$a = \frac{a_+ - a_-}{a_+ + a_-} = \frac{a_+ - a_-}{N_A} \quad \text{und} \quad b = \frac{b_+ - b_-}{N_B}$$

definierten Polarisationen erhält man die beiden gekoppelten Differentialgleichungen (vgl. ⁵)

$$\dot{a} = k I_0 (1 - a) - 2 r_A a - v_r Q N_B (a - b), \quad (1)$$

$$\dot{b} = -2 r_B b + v_r Q N_A (a - b) - 2 R b. \quad (2)$$

Dabei ist k eine Konstante, welche die Absorptionswahrscheinlichkeit für das Pumplicht enthält und den Grad des Mixing im angeregten Zustand von A beschreibt (vgl. ⁶). r_A und r_B sind die Relaxationsraten der A- bzw. B-Atome infolge von Stößen mit Puffergasatomen und der Wand der Absorptionszelle. Stöße zwischen gleichartigen Atomen brauchen

nicht berücksichtigt zu werden, da sie in der ($I=0$)-Näherung keine Änderung der resultierenden Polarisation eines Ensembles bewirken. Q ist der über alle Relativgeschwindigkeiten gemittelte Wirkungsquerschnitt für Spinaustausch bei A-B-Stößen und v_r eine gemittelte Relativgeschwindigkeit zwischen A- und B-Atomen. R ist die Relaxationsrate der B-Atome infolge Einstrahlung der Resonanzfrequenz. R ist proportional zu $H_1^2 f(\omega - \omega_0)$, wobei $f(\omega - \omega_0)$ eine „Formfunktion“ ist, die von der Differenz der eingestrahnten Frequenz ω und der exakten Resonanzfrequenz ω_0 abhängt. Die Gestalt dieses Ausdrucks ist jedoch für alle Betrachtungen unwichtig.

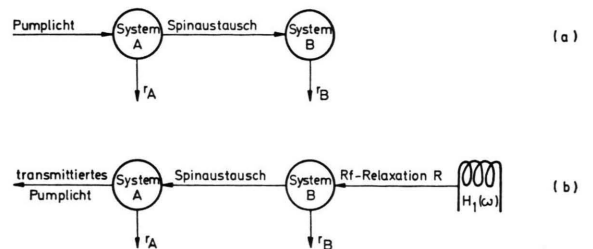


Abb. 1. (a) Blockbild des Pumpvorgangs, (b) Blockbild des Detektionsvorgangs.

Abbildung 1 zeigt zur Veranschaulichung der Verhältnisse Blockbilder des Pump- und Detektionsvorgangs.

III. Die Pulsmethode

Bei diesem Meßverfahren wird der B-Dampf durch rechteckförmige Resonanzfrequenzpulse (typische Dauer: 0,5 sec) depolarisiert. Abbildung 2 zeigt den zeitlichen Verlauf von $R(t)$ und den Polarisationen $b(t)$ und $a(t)$. Vor dem Einschalten der Resonanzfrequenz liegen die Polarisationen a_0 und b_0 vor. Nach dem Einschalten fallen $b(t)$ und $a(t)$ ab. $a(t)$ kann durch Beobachtung des transmittierten Pumplichts direkt verfolgt werden (Abb. 2).

Im folgenden interessiert nur das Zeitintervall $\tau_1 \leq t \leq \tau_2$, in dem $R(t) = r = \text{const}$ ist. τ_1 wird als Zeitnullpunkt angenommen ($\tau_1 = 0$).

Aus den Gln. (1) und (2) ergibt sich als Lösung:

$$a(t) = k_1 e^{-\Theta_1 t} + k_2 e^{-\Theta_2 t} + a_{\min}. \quad (3)$$

Dabei ist

$$\Theta_{1,2} = \frac{\beta + \delta}{2} \pm \sqrt{\left(\frac{\beta + \delta}{2}\right)^2 - \Omega_0^2}, \quad \Theta_1 > \Theta_2 \quad (4)$$

³ H. GIBBS, Phys. Rev. **139**, A 1374 [1965].

⁴ F. A. FRANZ, Phys. Rev. **141**, 105 [1966].

⁵ S. M. JARRETT, Phys. Rev. **133**, A 111 [1964].

⁶ J. FRICKE, J. HAAS, E. LÜSCHER u. F. A. FRANZ, Phys. Rev. **163**, 45 [1967].

$$a_{\min} = \alpha \delta / \Omega_0^2$$

mit

$$\begin{aligned} \alpha &= k I_0, \\ \beta &= k I_0 + 2 r_A + v_r Q N_B, \\ \gamma &= v_r Q N_A, \\ \delta &= 2 r_B + v_r Q N_A + 2 r, \\ \varepsilon &= v_r Q N_B, \\ \Omega_0^2 &= \beta \delta - \gamma \varepsilon, \\ \eta &= \beta + \delta. \end{aligned} \quad (5)$$

k_1 und k_2 hängen von den Anfangsbedingungen des Systems ab und können im Vorzeichen wechseln; dieses Problem wird im Anhang betrachtet. Bei den Testmessungen an dem Cs-Rb-Ar-System waren k_1 und k_2 immer positiv.

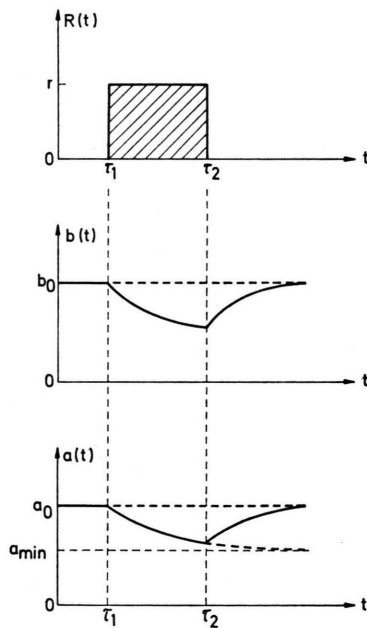


Abb. 2. Zeitlicher Verlauf von $R(t)$ und der Polarisationen $b(t)$ und $a(t)$ bei der Pulsmethode.

Die Kurve $a(t)$ [Gl. (3)] kann bis auf einen Verstärkungsfaktor V direkt mittels Photomultiplier und Oszillograph oder Vielkanal-Analysator aufgenommen werden. Die Information über die interessierenden Größen steckt in den beiden Zeitkonstanten Θ_1 und Θ_2 , den Konstanten k_1 und k_2 und in a_{\min} . Nun ist es nicht einfach, Absolutwerte einer Polarisation zu bestimmen; a_{\min} entfällt also als Informationsquelle. k_1 und k_2 sind ebenfalls unbrauchbar, da die Anfangsbedingungen des Systems sehr schwer

zu erfassen sind. Alle Daten müssen daher den beiden Zeitkonstanten entnommen werden.

Ist die Pulslänge so groß, daß das System die Gleichgewichtspolarisation a_{\min} annimmt, so kann man diesen Wert als neue Null-Linie wählen und dann die Größen Θ_1 und Θ_2 zeichnerisch bestimmen.

Wie die Definitionen (4) und (5) zeigen, ergibt sich durch Addition von Θ_1 und Θ_2 die Größe

$$\eta = \beta + \delta = \Theta_1 + \Theta_2 \quad (6)$$

und durch Multiplikation

$$\Omega_0^2 = \beta \delta - \gamma \varepsilon = \Theta_1 \Theta_2. \quad (7)$$

Verändert man die Höhe des Rechteckpulses, dann geht r über in einen anderen Wert $r^+ = r + \Delta r$ und $\delta \rightarrow \delta^+ = \delta + 2 \Delta r$. Mit diesem veränderten Puls wird nun eine neue $a(t)$ -Kurve aufgenommen und aus ihr die Größen

$$\eta^+ = \beta + \delta^+ = \eta + 2 \Delta r \quad (8)$$

und

$$\Omega_0^{+2} = \beta \delta^+ - \gamma \varepsilon = \Omega_0^2 + 2 \beta \Delta r \quad (9)$$

bestimmt.

Aus diesen beiden Gleichungen folgt

$$\beta = (\Omega_0^{+2} - \Omega_0^2) / (\eta^+ - \eta) = k I_0 + 2 r_A + v_r Q N_B \quad (10)$$

und damit

$$\delta = \eta - \beta \equiv \eta - (\Omega_0^{+2} - \Omega_0^2) / (\eta^+ - \eta). \quad (11)$$

Unter Verwendung dieser beiden Ergebnisse ergibt sich dann aus Gl. (7):

$$\gamma \varepsilon = \frac{\Omega_0^{+2} - \Omega_0^2}{\eta^+ - \eta} \left(\eta - \frac{\Omega_0^{+2} - \Omega_0^2}{\eta^+ - \eta} \right) - \Omega_0^2 = v_r^2 Q^2 N_A N_B \quad (12)$$

und daraus $Q = \sqrt{\gamma \varepsilon} / v_r \sqrt{N_A N_B}$.

Variiert man die Amplitude des Resonanz-Rechteckpulses – und damit r –, so ergibt sich δ als Funktion der Rf-Amplitude. Eine Extrapolation dieser Kurve nach $r \rightarrow 0$ gibt $2 r_B + v_r Q N_A$, woraus mit (12) die Relaxationsrate r_B folgt. Den Messungen kann man außerdem auch die Abhängigkeit der Relaxationsrate r von der Rf-Amplitude entnehmen [aus $\Delta r = \frac{1}{2}(\delta^+ - \delta)$ und dem Wert von $\delta_{r=0} = 2 r_B + v_r Q N_A$]. Um den Wirkungsquerschnitt für Spinaustausch Q zu bestimmen, ist also im Prinzip nur die Kurve $a(t)$ für zwei verschiedene Pulshöhen aufzunehmen. Dies kann, z. B. mit Hilfe eines Signalanalysators, in wenigen Minuten geschehen. Während dieser kurzen Zeit können die Bedingungen (Inten-

sität der Pumplichtquelle, Dampfdrücke, ...) sehr gut konstant gehalten werden. Zur Bestimmung von r_B sind Messungen bei verschiedenen Pulshöhen erforderlich (Extrapolation).

Für kleine Rf-Amplituden läßt sich diese Methode nicht mehr anwenden, da das Signal-Rausch-Verhältnis zu klein wird. Mit der im nächsten Abschnitt geschilderten „Phasenmethode“ lassen sich jedoch auch Messungen für kleine Rf-Amplituden durchführen.

IV. Die Phasenmethode

Bei diesem Verfahren wird die Resonanzfrequenz und damit die Relaxationsrate R des B-Grundzustandes sinusförmig mit der Frequenz Ω moduliert.

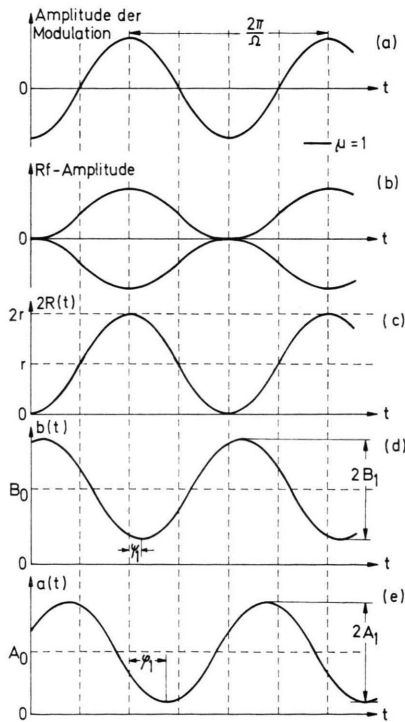


Abb. 3. Zeitlicher Verlauf der Rf-Amplitude, der Relaxationsrate $R(t)$ und der Polarisation $b(t)$ und $a(t)$ bei der Phasenmethode.

Abbildung 3 zeigt die Rf-Amplitude, die Relaxationsrate R und die Polarisationen b und a als Funktion der Zeit t . In komplexer Darstellung wird der Term $2R$ aus Gl. (2) jetzt ersetzt durch

$$2R = r(1 + \mu e^{i\Omega t}).$$

r ist gegeben durch die Amplitude der unmodulierten Rf, μ ist der Modulationsgrad ($0 \leq \mu \leq 1$),

Ω die Modulationsfrequenz. Um möglichst große Signale zu erhalten, wird man $\mu=1$ wählen (vgl. Abb. 3); für die Meßmethode selbst ist es jedoch völlig unerheblich, wie groß der Modulationsgrad ist.

Die Differentialgleichungen (1) und (2) gehen unter Verwendung der Abkürzung (5) über in

$$\dot{a} = \alpha + \beta a + \gamma b, \quad (13)$$

$$\dot{b} = -\delta' \beta + \varepsilon a - \mu r e^{i\Omega t} b \quad (14)$$

mit

$$\delta' = 2r_B + v_r Q N_A + r.$$

Zur Lösung dieses Dgl.-Systems werden für $a(t)$ und $b(t)$ Fourier-Reihen angesetzt:

$$a(t) = A_0 + A_1 \cdot e^{i(\Omega t + \varphi_1)} + A_2 \cdot e^{i(2\Omega t + \varphi_2)} + \dots, \quad (15)$$

$$b(t) = B_0 + B_1 \cdot e^{i(\Omega t + \psi_1)} + B_2 \cdot e^{i(2\Omega t + \psi_2)} + \dots \quad (16)$$

Die Winkel $\varphi_1, \varphi_2, \dots$ und ψ_1, ψ_2, \dots geben die Phasenverschiebungen der Polarisationen gegenüber der Phase der Modulation an (vgl. Abb. 3). Durch Beobachtung des transmittierten Pumplichts sind $\varphi_1, \varphi_2, \dots$ und Relativwerte für A_0, A_1, A_2, \dots meßbar.

Mit diesen Ansätzen erhält man aus den Gln. (13) und (14) die Beziehungen

$$\text{ctg } \varphi_1 = (\Omega^2 - \Omega_0'^2) / \eta' \Omega \quad (17)$$

$$\text{und} \quad A_1 / \cos \varphi_1 = \mu r \gamma B_0 / (\Omega^2 - \Omega_0'^2). \quad (18)$$

Dabei wurde $\eta' = \beta + \delta'$ und $\Omega_0'^2 = \beta \delta' - \gamma \varepsilon$ gesetzt. φ_1 nimmt Werte zwischen 0 und -2π an.

Für $\Omega = \Omega_0'$ ist $\text{ctg } \varphi_1 = 0$, d. h. $\varphi_1 = -90^\circ$. Mißt man daher für einige Modulationsfrequenzen – bei fester Rf-Amplitude – die Phasenverschiebung φ_1 , so kann aus dem (-90°) -Durchgang von φ_1 die Größe $\Omega_0'^2$ bestimmt werden. Bei bekannten $\Omega_0'^2$ läßt sich dann mit einem (Ω, φ_1) -Paar aus Gl. (17) $\eta' = \beta + \delta'$ berechnen. Die Situation ist nun dieselbe wie beim Pulsverfahren. Man verändert $r \rightarrow r^* = r + \Delta r$ und erhält die Größen

$$\Omega_0'^2 = \beta \delta^* - \gamma \varepsilon$$

und

$$\eta^* = \beta + \delta^*.$$

Aus diesen 4 Größen lassen sich dann mit den Gln. (10), (11) und (12) wieder β, δ und $\gamma \varepsilon$ bestimmen.

Die Messung der (-90°) -Durchgänge ist unnötig, wenn man neben φ_1 auch Relativwerte (!) von A_1 mißt. Der Modulationsfrequenz Ω_1 seien A_{11} und φ_{11} , der Frequenz Ω_2 seien A_{12} und φ_{12} zuge-

ordnet. Gleichung (18) zeigt dann:

$$\frac{A_{11}/\cos \varphi_{11}}{A_{12}/\cos \varphi_{12}} = \frac{\Omega_2^2 - \Omega_0'^2}{\Omega_1^2 - \Omega_0'^2} \quad (19)$$

Hieraus wird $\Omega_0'^2$ berechnet; Gl. (17) liefert dann das zugehörige η' .

V. Experimente

Mit den beschriebenen Methoden wurden Testmessungen an einem Cs-Rb-Ar-System durchgeführt. Der Cs-Dampf wurde direkt mit Cs-D₁- σ^+ -Licht gepumpt, die Rb-Atome wurden durch Spinaustausch polarisiert (d. h. Cs=A-Atom, Rb=B-Atom). Bei allen Messungen wurde natürliches Rb verwendet; dieses besteht zu 72,15% aus Rb⁸⁵ ($I = \frac{5}{2}$, $|g_F| = \frac{1}{2}$ im Grundzustand) und zu 27,85% aus Rb⁸⁷ ($I = \frac{3}{2}$, $|g_F| = \frac{1}{2}$ im Grundzustand). Der Versuchsaufbau entsprach einer üblichen Apparatur für optisches Pumpen (vgl. z. B. ⁷). Der Argondruck betrug etwa 8,4 Torr; die Zelle wurde auf einer Temperatur von 40 °C gehalten.

a) Pulsmethode

Die Messungen wurden mit der in Abb. 4 schematisch dargestellten Anordnung durchgeführt. Die Rf-Pulse

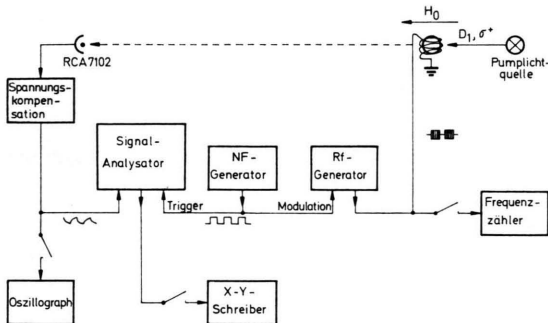


Abb. 4. Schematischer Aufbau der Apparatur bei der Puls-methode.

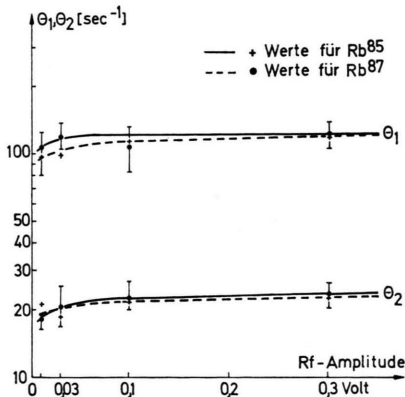


Abb. 5. Die Zeitkonstanten Θ_1 und Θ_2 als Funktionen der Rf-Amplitude für Cs-Rb⁸⁵ und Cs-Rb⁸⁷.

haben eine Pulsdauer von 0,5 sec und eine Wiederhol-frequenz von 1 Hz. Die modulierende Rechteckspannung wird auch zum Triggern des Signalanalysators verwendet. Gleichspannungsanteile des Multipliersignals werden mit einer variablen Spannungsquelle wegkompensiert. Für jede Rf-Amplitude wurden 64 Durchläufe aufgenommen, und die vom Signalanalysator gemittelten Kurven dann mit dem X-Y-Schreiber gezeichnet. Aus der Asymptote für $t \approx 0,5$ sec wurde die „Null-Linie“ ($a_{\min} = 0$) bestimmt.

Abbildung 5 zeigt den Verlauf von Θ_1 und Θ_2 als Funktion der Pulshöhe für Rb⁸⁵ und Rb⁸⁷.

b) Phasenmethode

Die verwendete Schaltung ist in Abb. 6 dargestellt. Zur Modulation der Resonanzfrequenz wird der interne Sinusgenerator des Lock-in-Verstärkers (Typ PAR Modell HR-8) verwendet. Wenn der Rf-Generator gleichstromgekoppelt ist, entsteht keine Phasendifferenz zwischen der modulierten Rf, d. h. der Rf-induzierten Relaxationsrate $R(t)$, und dem Modulationssignal. Das Modulationssignal kann daher als Referenzsignal verwendet werden, von welchem aus der gesuchte Phasenwinkel φ_1 gerechnet wird.

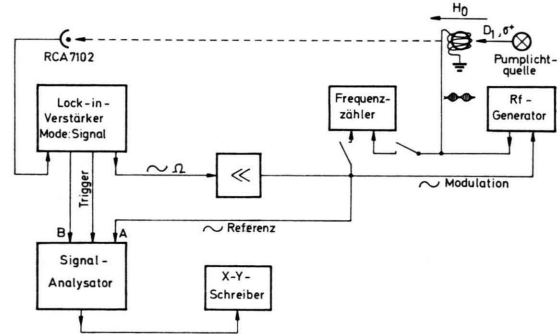


Abb. 6. Schematischer Aufbau der Apparatur zur Messung nach der Phasenmethode.

Der Lock-in-Verstärker wird nur als Schmalband-verstärker — also nicht phasenempfindlich — betrieben. Bei dieser Einstellung erscheint an seinem Ausgang ein Sinussignal der Frequenz Ω (Ω = Modulationsfrequenz), dessen Amplitude proportional ist zur Amplitude der Ω -Fourier-Komponente des Multiplier-signals. Der Signalanalysator wird mit einer Rechteckspannung (synchron zur modulierenden Spannung, die dem Calibration-output des Lock-in-Verstärkers entnommen wird), getriggert.

φ_1 wird durch Abmessen der Verschiebung der Null-durchgänge bestimmt. Bei der Auswertung muß noch berücksichtigt werden, daß der Lock-in-Verstärker selbst eine Phasenverschiebung erzeugt, die in einem Vor-versuch ermittelt wird.

Die Messungen wurden nur an dem häufigeren Rb⁸⁵ durchgeführt. Abbildung 7 zeigt die Phasenverschie-

⁷ W. W. HOLLOWAY, E. LÜSCHER u. R. NOVICK, Phys. Rev. 126, 2109 [1962].

bung φ_1 , Abb. 8 die Fourier-Amplitude A_1 als Funktion der Modulationsfrequenz.

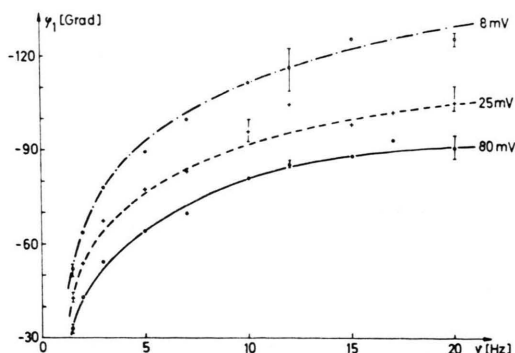


Abb. 7. φ_1 als Funktion der Modulationsfrequenz für Cs-Rb⁸⁵. Parameter ist die Rf-Amplitude.

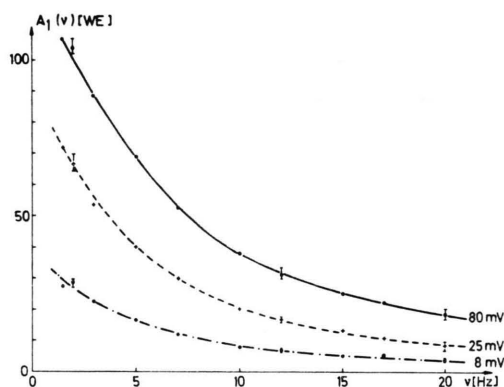


Abb. 8. Relativwerte von A_1 als Funktion der Modulationsfrequenz. Parameter ist die Rf-Amplitude.

VI. Ergebnisse und Diskussion

Mit der Pulsmethode ergaben sich für die Wirkungsquerschnitte für Spinaustausch die Werte

$$Q(\text{Cs}, \text{Rb}^{85}) = (1,45 \pm 0,30) \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2$$

und

$$Q(\text{Cs}, \text{Rb}^{87}) = (1,6 \pm 0,3) \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2.$$

Die Relaxationsrate r_{Rb} wurde abgeschätzt zu

$$r_{\text{Rb}} \approx 16 \text{ sec}^{-1},$$

woraus sich wegen $1/T_1 = 2 r_{\text{Rb}}$ eine Depolarisationszeit von etwa 31 msec ergibt. Die Relaxationsrate setzt sich zusammen aus einem Beitrag der Rb-Ar-Stöße $r_{\text{Rb}, \text{Ar}}$ und einem Anteil $r_{\text{Rb}, \text{W}}$ aus Rb-Wand-Stößen:

$$r_{\text{Rb}} = r_{\text{Rb}, \text{Ar}} + r_{\text{Rb}, \text{W}}.$$

Bei einer runden Zelle vom Radius ϱ gilt nach BERNHEIM⁸ näherungsweise:

$$r_{\text{Rb}, \text{W}} = \frac{\pi^2}{\varrho^2} D_0 \frac{760}{p}.$$

Dabei ist D_0 die Diffusionskonstante bei einem Puffergasdruck von 760 Torr und p der tatsächliche Puffergasdruck in Torr.

Die Diffusionskonstante D_0 hat nach⁹ ungefähr den Wert $D_0 = 0,2 \text{ cm}^2/\text{sec}$; damit läßt sich $r_{\text{Rb}, \text{W}}$ und $r_{\text{Rb}, \text{Ar}}$ berechnen ($\varrho = 3,9 \text{ cm}$). Aus

$$r_{\text{Rb}, \text{Ar}} = v_{\text{rel}} Q(\text{Rb}, \text{Ar}) N_{\text{Ar}}$$

ergibt sich dann:

$$Q(\text{Rb}, \text{Ar}) \approx 2 \cdot 10^{-22} \text{ cm}^2.$$

Die Phasenmethode liefert

$$Q(\text{Cs}, \text{Rb}^{85}) = (1,3 \pm 0,3) \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2.$$

Bei zusätzlicher Verwendung von A_1 -Werten erhält man als Wirkungsquerschnitt für Spinaustausch den Wert

$$Q(\text{Cs}, \text{Rb}^{85}) = (1,1 \pm 0,2) \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2.$$

Für den Depolarisationsquerschnitt erhält man

$$Q(\text{Rb}, \text{Ar}) \approx 6 \cdot 10^{-22} \text{ cm}^2.$$

Als Wirkungsquerschnitt für Spinaustausch zwischen Cs- und Rb-Atomen haben BOUCHIAT und GROSSETÊTE² die Werte

$$Q(\text{Cs}, \text{Rb}^{85}) = Q(\text{Cs}, \text{Rb}^{87}) \approx 2,4 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2$$

gemessen. GIBBS und HULL¹⁰ geben

$$Q(\text{Cs}, \text{Rb}^{87}) = (2,3 \pm 0,2) \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2$$

an. Nach⁹ ist $Q(\text{Rb}^{87} - \text{Ar}) \approx 9 \cdot 10^{-22} \text{ cm}^2$, nach¹ hat $Q(\text{Rb} - \text{Ar})$ den Wert $3,7 \cdot 10^{-22} \text{ cm}^2$ und nach¹¹ ist $Q(\text{Rb} - \text{Ar}) \approx 1,1 \cdot 10^{-22} \text{ cm}^2$. Die für die Wirkungsquerschnitte für Spinaustausch zwischen Cs- und Rb⁸⁵, bzw. Rb⁸⁷-Atomen gemessenen Werte sind nur um etwa 35% kleiner als die von BOUCHIAT und GROSSETÊTE² bzw. GIBBS und HULL¹⁰ angegeben. Damit zeigt sich, daß die zur Größenordnungsbestimmung gedachte Methode brauchbare Resultate liefert. Eine Ursache für die Abweichung dürfte in den vereinfachenden Annahmen des verwendeten Modells liegen. Gibbs zeigte, daß die mit Hilfe eines ($I=0$)-Modells erhaltenen Ergebnisse für die Wirkungsquerschnitte für Spin-

⁸ R. A. BERNHEIM, J. Chem. Phys. **36**, 135 [1962].

⁹ M. ARDITI u. T. R. CARVER, Phys. Rev. **136**, A 643 [1964].

¹⁰ H. M. GIBBS u. R. J. HULL, Phys. Rev. **153**, 132 [1967].

¹¹ F. A. FRANZ, Phys. Rev. **139**, A 603 [1965].

austausch bis um den Faktor 6,8 von den richtigen Werten abweichen können. Weitere Abweichungen können aus Ungenauigkeiten der Dampfdichten entstehen.

Ziel der vorliegenden Arbeit war es, Meßmethoden zu entwickeln, die ein Studium der Relaxation und des Spinaustausches von indirekt gepumpten Atomen beispielsweise mit inneren unaufgefüllten Schalen (Europium^{12,13}, Mangan¹⁴) erlauben; denn selbst die Größenordnung der Wirkungsquerschnitte für Spinaustausch und Depolarisation durch Puffergasstöße ist bei solchen Atomen noch nicht bekannt. An einer Verfeinerung der Meßmethodik durch Nachweis von Polarisation und Ausrichtung eines durch Spinaustausch gepumpten Eu- oder Mn-Dampfes wird gearbeitet (vgl. ^{13,14}).

VII. Anhang

Im folgenden sollen die Vorzeichen der Konstanten k_1 und k_2 aus Gl. (3) diskutiert werden.

Vor dem Einschalten des Pulses hat b den Wert $b_0 = a\epsilon/\Omega_0^2|_{r=0}$ und a den Wert $a_0 = a\delta/\Omega_0^2|_{r=0}$. Nun werde die Rf zur Zeit $t=0$ eingeschaltet. Die Amplitude – und damit die Relaxationsrate R – erreicht jedoch nicht sofort ihren vollen Wert r , sondern erst nach einer gewissen Anstiegszeit τ_A . Zu dieser Zeit hat die Polarisation der B-Atome den Wert $b(\tau_A) = (1-f)b_0$, mit $0 < f < 2$, da das resultierende magnetische Moment sich unter dem Einfluß des ansteigenden H_1 -Feldes aus der H_0 -Richtung herausgedreht hat. Die Polarisation der A-Atome ist in guter Näherung unverändert geblieben [$a(\tau_A) = a_0$], da in der Zeit $\tau_A \approx 10^{-5}$ sec noch kein merklicher Spinaustausch stattgefunden hat. Da alle Rechnungen sich auf die volle Pulshöhe und damit maximale Relaxationsrate r beziehen, die jedoch erst zur Zeit $t = \tau_A$ vorliegt, müssen als Anfangsbedingungen

die Werte $a(\tau_A) = a_0$ und $b(\tau_A) = (1-f)b_0$ verwendet werden. Geht man damit in die Gln. (1), (2) und (3) ein, so ergeben sich für k_1 und k_2 die Beziehungen

$$k_1 = \frac{\gamma b_0}{\Theta_1(\Theta_1 - \Theta_2)} (f\Theta_1 - 2r),$$

$$k_2 = \frac{\gamma b_0}{\Theta_2(\Theta_1 - \Theta_2)} (2r - f\Theta_2).$$

Ist $f=0$, d. h. steigt der Puls sehr schnell auf seinen vollen Wert an, so ist $k_1 < 0$. k_1 wird jedoch positiv, wenn bei gegebener maximaler Pulshöhe, d. h. bei gegebenem r , die Ungleichung $f > 2r/\Theta_1$ gilt [Gln. (4) und (5) zeigen, daß $2r < \Theta_1$ ist].

Hat sich während des Anstiegs des H_1 -Feldes auf seinen vollen Wert das magnetische Moment aus der H_0 -Richtung herausgedreht, so wird f größer als Null.

Der Drehwinkel ergibt sich aus der Beziehung

$$\hbar \omega = g \mu_B H_{1\text{eff}} \quad \text{zu} \quad \alpha = \frac{g \mu_B H_{1\text{eff}}}{\hbar} \tau_A,$$

wobei $H_{1\text{eff}}$ ein gemittelttes Feld bedeutet, das auf das magnetische Moment dieselbe Wirkung hat wie das während der Anstiegszeit τ_A anwachsende H_1 -Feld ($H_{1\text{eff}} = H_{1\text{max}}/\sqrt{3}$); für die Relaxationszeit τ_R des Systems gelte $\tau_R \gg \tau_A$. Im allgemeinen kann f den maximalen Wert 2 annehmen. Gilt $2 > f \geq 1$, so wird k_2 bei positivem k_1 negativ. Bei einer Anstiegszeit von $\tau_A = 10^{-5}$ sec liegt der Drehwinkel für $g=1$ in der Größenordnung von 10 bis 20°, für Kernspins ist er um den Faktor 1000 kleiner. Für Hüllenspins ist daher in der Regel k_1 positiv, für Kernspins negativ, was in der Tat beobachtet wurde¹⁵. Negative k_2 wurden nicht beobachtet.

Den Herren R. TILGNER und B.-H. MEYER danken wir für viele Diskussionen und Hinweise. Dem Bundesministerium für Bildung und Wissenschaft sind wir für die Gewährung von Sachmitteln zu Dank verpflichtet.

¹² R. TILGNER, J. FRICKE u. J. HAAS, *Helv. Phys. Acta* **42**, 740 [1969].

¹³ R. TILGNER, J. FRICKE u. J. HAAS, wird veröffentlicht.

¹⁴ A. ASSFALG, J. FRICKE, J. HAAS, R. TILGNER u. E. LÜSCHER, wird veröffentlicht.

¹⁵ B.-H. MEYER, Diplomarbeit, Technische Universität München 1970.