

Spinaustausch zwischen optisch gepumptem Cs<sup>133</sup> und N<sup>14</sup>Beschreibung einer Apparatur für große N<sup>14</sup>-Signale

R. TILGNER, J. FRICKE und J. HAAS

Physik-Department der Technischen Hochschule München

(Z. Naturforsch. 24 a, 337–339 [1969]; eingegangen am 16. November 1968)

An apparatus for alkali-nitrogen spin exchange is described yielding N<sup>14</sup> signals with a high signal to noise ratio. Measurements in the range of intermediate coupling (Back-Goudsmit-range) are reported and compared with values of first order perturbation theory.

Seit Einführung der Spinaustauschtechnik zur Polarisation von freien Elektronen durch DEHMELT<sup>1</sup> wurde diese Methode u. a. besonders erfolgreich zur hochfrequenzspektroskopischen Bestimmung von Hyperfeinstruktur und  $g$ -Faktoren mehrerer Elemente verwendet, die nicht direkt optisch polarisierbar sind<sup>2–6</sup>. Über N<sup>14</sup> und N<sup>15</sup> liegen als die genauesten Werte jene von HOLLOWAY, LÜSCHER und NOVICK<sup>3</sup>, sowie die von LAMBERT und PIPKIN<sup>4</sup> vor. Soviele uns bekannt ist, wurde bei keinem dieser Experimente das Verhalten des Stickstoffs auch bei mittleren Magnetfeldern, also im Bereich der beginnenden Entkopplung von Kern- und Hüllmoment (Back-Goudsmit-Bereich), gesondert betrachtet.

Wegen der sehr geringen Hyperfeinaufspaltung des N<sup>14</sup> ist es möglich, schon bei sehr niedrigen Magnetfeldern ( $\leq 5$  Oe) ein für den Übergangsbereich typisches Termschema zu beobachten. Abb. 1 zeigt den störungstheoretischen Termverlauf erster Ordnung bis zu Feldstärken von etwa 18 Oe bei Annahme von  $LS$ -Kopplung. Bereits bei diesen kleinen Feldstärken zeichnen sich für den Back-Goudsmit-Bereich charakteristische Verhältnisse ab. Da mit zunehmender Entkopplung von Kern- und Hüllendrehimpuls die für die  $|F m_F\rangle$ -Darstellung ( $F$  = Gesamtdrehimpuls) gültigen Auswahlregeln unschärfer werden, ist zur Untersuchung dieses Bereiches eine Anlage, die starke N<sup>14</sup>-Signale ermöglicht, notwendig.

## Apparatur

Ausgangspunkt bei Entwurf einer solchen Apparatur war die Anlage von HOLLOWAY, LÜSCHER und

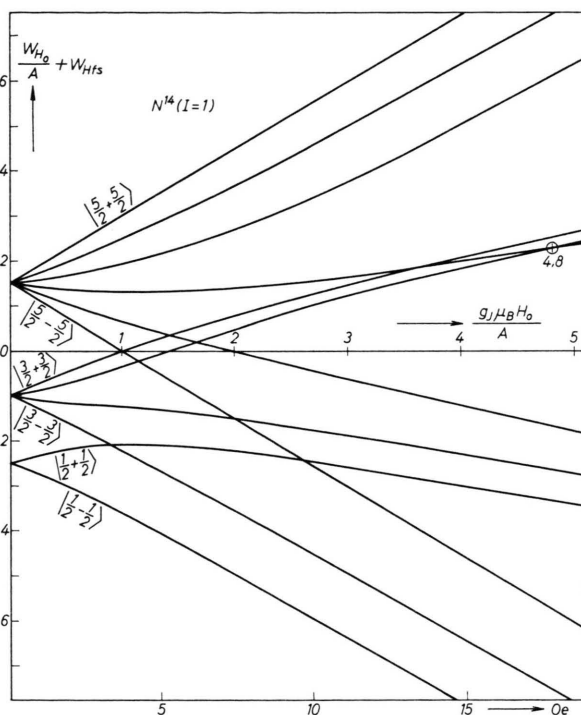


Abb. 1. Verhalten des N<sup>14</sup>-Grundzustandes ( $4S_{3/2}$ , Kernspin  $I=1$ ) im Magnetfeld. Störungstheoretische Werte 1. Ordnung bei Annahme von  $LS$ -Kopplung. Der durch  $\circ$  gekennzeichnete Termschnittpunkt wurde auch experimentell bestimmt.  $W_{Hfs}$ : Termenergie durch Hyperfeinwechselwirkung;  $W_{H_0}$ : Termenergie durch Wechselwirkung mit dem statischen äußeren Magnetfeld  $H_0$ ;  $A$ : Hyperfeinkonstante (10,45 MHz);  $\mu_B$ : Bohrsches Magneton;  $g_J$ : Landé-Faktor der Hülle.

NOVICK<sup>3</sup>. In der üblichen Anordnung zum optischen Pumpen an Cs können der Druck und die Durchströmgeschwindigkeit des Puffergases kontinuierlich

<sup>1</sup> H. G. DEHMELT, Phys. Rev. **109**, 381 [1958].

<sup>2</sup> L. W. ANDERSON, F. M. PIPKIN u. J. C. BAIRD, Phys. Rev. **120**, 1279 [1960].

<sup>3</sup> W. W. HOLLOWAY, E. LÜSCHER u. R. NOVICK, Phys. Rev. **126**, 2109 [1962].

<sup>4</sup> R. H. LAMBERT u. F. M. PIPKIN, Phys. Rev. **129**, 1233 [1963].

<sup>5</sup> R. H. LAMBERT u. F. M. PIPKIN, Phys. Rev. **128**, 198 [1962].

<sup>6</sup> G. S. HAYNE u. H. G. ROBINSON, Bull. Am. Phys. Soc. **5**, 411 [1960].



variiert und mit Hilfe eines U-Rohr-Ölmanometers sowie eines geeichten Dosierventils gemessen werden. Der atomare Stickstoff wird durch eine elektrodenlose HF-Entladung im Zuleitungsrohr, etwa 50 cm vor der Pumpzelle, erzeugt. Bei Versuchen zur Optimierung der Signale erwies sich eine Anordnung, bei der die Gas-Zu- und -Rückleitung parallel und unmittelbar nebeneinander in die Zelle einmündeten, als besonders vorteilhaft. Da außerdem die Rekombination des atomaren Stickstoffs stark von der Beschaffenheit der Gefäßwände abhängt<sup>7</sup>, wurde die Strecke von der Entladung bis zur Zelle mit  $(\text{CH}_3)_2\text{Cl}_2\text{Si}$  ausgekleidet. Nach diesen Maßnahmen ließ sich die Dichte der Stickstoffatome in der Pumpzelle durch geringe Änderung des HF-Entladungsstroms über einen großen Bereich variieren. So war es beispielsweise möglich eine so hohe N-Atomdichte in der Pumpzelle zu erzeugen, daß kein Cs-Signal mehr beobachtbar war. Wegen der geringen Stickstoff-Rekombination konnte man dabei die Intensität der HF-Entladung so klein halten, daß Störungen des Lock-in-Verstärkersystems durch elektrische Felder der Gasentladung vermieden wurden. Als Bedingungen für optimale N-Signale ergaben sich ein Puffergasdruck von 8 Torr, ein Gasdurchfluß zwischen 1 und 10  $\text{cm}^3/\text{sec}$  bei einer Einströmgeschwindigkeit in die Pumpzelle von ungefähr 10  $\text{cm}/\text{sec}$ .

### Messungen

1. Sämtliche beobachtbaren Signale der Stickstoffatome, und zwar die Zeeman- ( $\Delta m_F = \pm 1$ ,  $\Delta F = 0$ ) sowie die Hyperfein- $\sigma$ -Übergänge ( $\Delta m_F = \pm 1$ ,  $\Delta F = \pm 1$ ) wurden im gesamten Bereich von 0 Oe bis 18 Oe mit großem Signal-Rausch-Verhältnis erhalten (vgl. Abb. 2 und 3).

2. Zwei Testversuche für die auch im Übergangsbereich gleichbleibende Signalqualität wurden durchgeführt:

a) Der Schnittpunkt der beiden Niveaus  $|5/2 - 1/2\rangle$  und  $|3/2 + 1/2\rangle$  ( $|F m_F\rangle$ -Nomenklatur) wurde bestimmt. Das entsprechende Hyperfein- $\sigma$ -Signal ließ sich mit steigendem Magnetfeld bis zu einer Übergangsfrequenz von etwa 57 kHz verfolgen. Durch graphische Extrapolation auf den Niveauschnittpunkt (level crossing) wurde das zugehörige Magnetfeld zu  $(17,93 \pm 0,14)$  Oe ermittelt. Dieser Wert stimmt

<sup>7</sup> K. M. EVENSON u. D. S. BURCH, J. Chem. Phys. **45**, 2450 [1966].

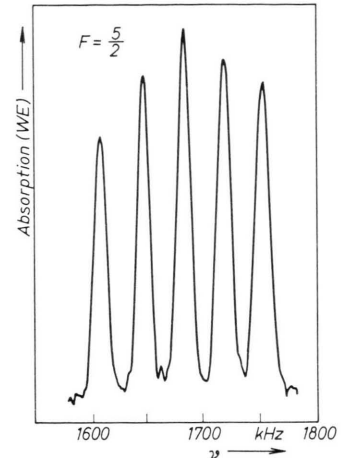


Abb. 2. Zeeman-Übergänge bei ungefähr 1 Oe. Dauer des Resonanzdurchganges etwa 3 Minuten. Mit steigender Frequenz entsprechen den Resonanzen folgende Übergänge innerhalb des  $F=5/2$ -Terms:

$$(m_F =) \frac{5}{2} - \frac{3}{2}, \frac{3}{2} - \frac{1}{2}, \frac{1}{2} - \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} - \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} - \frac{5}{2}$$

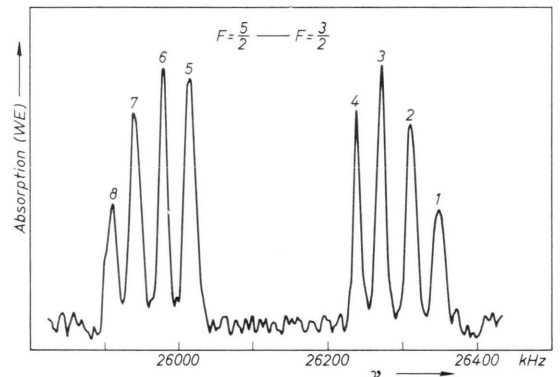


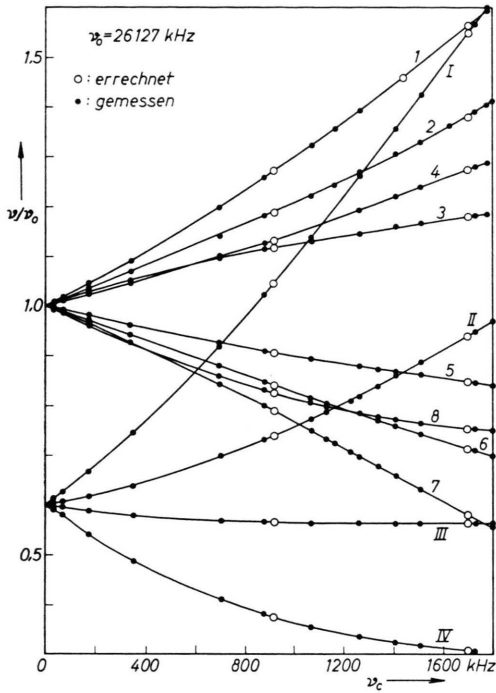
Abb. 3. Hyperfein- $\sigma$ -Übergänge bei ungefähr 100 mOe. Dauer des Resonanzdurchganges etwa 5 Minuten. Mit steigender Frequenz entsprechen die Resonanzen in der  $|F m_F\rangle$ -Darstellung folgenden Übergängen:

$$\begin{aligned} & \left| \frac{5}{2} \frac{3}{2} \right\rangle - \left| \frac{5}{2} \frac{1}{2} \right\rangle \{8\}, \left| \frac{3}{2} \frac{1}{2} \right\rangle - \left| \frac{3}{2} -\frac{1}{2} \right\rangle \{7\}, \\ & \left| \frac{5}{2} -\frac{1}{2} \right\rangle - \left| \frac{5}{2} -\frac{3}{2} \right\rangle \{6\}, \left| \frac{3}{2} -\frac{3}{2} \right\rangle - \left| \frac{3}{2} -\frac{5}{2} \right\rangle \{5\}, \\ & \left| \frac{5}{2} \frac{3}{2} \right\rangle - \left| \frac{5}{2} \frac{5}{2} \right\rangle \{4\}, \left| \frac{3}{2} \frac{1}{2} \right\rangle - \left| \frac{3}{2} \frac{3}{2} \right\rangle \{3\}, \\ & \left| \frac{3}{2} -\frac{1}{2} \right\rangle - \left| \frac{3}{2} \frac{1}{2} \right\rangle \{2\}, \left| \frac{3}{2} -\frac{3}{2} \right\rangle - \left| \frac{3}{2} -\frac{5}{2} \right\rangle \{1\}. \end{aligned}$$

Die Zahl in { } gibt die Nummer an, mit der der Übergang in Abb. 3 und 4 bezeichnet ist.

mit demjenigen, der sich aus der Störungsrechnung 1. Ordnung bei Annahme von  $LS$ -Kopplung ergibt, innerhalb der Fehlergrenzen überein (vgl. Abb. 1).

b) Die Hyperfeinstrukturaufspaltung wurde bis zu Feldern von rund 5 Oe gemessen. Hierbei wurden sämtliche Hyperfein- $\sigma$ -Übergänge mit steigendem Magnetfeld verfolgt und an zwei Stellen mit störungstheoretischen Werten 1. Ordnung verglichen.



Innerhalb der Meßgenauigkeit waren dabei keine Abweichungen festzustellen (vgl. Abb. 4).

Prof. Dr. E. LÜSCHER sind wir für die Anregung zu dieser Arbeit und sein ständiges Interesse zu großem Dank verpflichtet.

Abb. 4. Relative Hyperfeinaufspaltung von N<sup>14</sup>.  
 $\nu_0 = \Delta(5/2 - 3/2)/h$ , wobei  $\Delta(5/2 - 3/2)$  die Hyperfeinaufspaltung der Terme  $F=3/2$  und  $5/2$  bedeutet.  $\nu$  ist die im statischen Magnetfeld  $H_0$  beobachtete Übergangsfrequenz.  $H_0$  wurde durch Beobachten der Cs-Resonanz von 350 kHz/Oe gemessen. Die Cs-Resonanz  $\nu_c$  ist als Maß für  $H_0$  aufgetragen. Bedeutung der arabischen Ziffern wie unter Abb. 3 angegeben. Analog bezeichnen die römischen Ziffern mit steigender Frequenz die Übergänge:

$$\begin{aligned} &|\frac{1}{2} \frac{1}{2}\rangle - |\frac{3}{2} - \frac{1}{2}\rangle \{\text{IV}\}, |\frac{1}{2} - \frac{1}{2}\rangle - |\frac{3}{2} - \frac{3}{2}\rangle \{\text{III}\}, \\ &|\frac{1}{2} \frac{1}{2}\rangle - |\frac{3}{2} \frac{3}{2}\rangle \{\text{II}\}, |\frac{1}{2} - \frac{1}{2}\rangle - |\frac{3}{2} \frac{1}{2}\rangle \{\text{I}\}. \end{aligned}$$