

Zur Messung von Vorzeichen atomarer Aufspaltungskonstanten bei Verwendung von Hochfrequenz- und Level-Crossing-Techniken

Gebhard von Oppen

Institut für Strahlungs- und Kernphysik, Technische Universität Berlin

(Z. Naturforsch. **28 a**, 1263–1267 [1973]; eingegangen am 13. Mai 1973)

On the measurement of signs of atomic splitting constants using radiofrequency and level-crossing techniques

In radiofrequency and level-crossing experiments the sign of atomic splitting constants (e. g. hfs-constants, g_J -values, tensor polarizabilities) can often be measured only under special experimental conditions. Some general features of these conditions are discussed starting from transformation properties of the atomic hamiltonian. In particular, the dependenc of level-crossing signals on the signs of atomic splitting constants is analyzed.

1. Einleitung

Atomare Aufspaltungskonstanten, wie z. B. Hyperfeinstruktur(Hfs)-Konstanten, g_J -Faktoren oder tensorielle Polarisierbarkeiten können mit optischen Interferometern aus den Abständen von Spektrallinien eines Multipletts bestimmt werden, falls die Aufspaltungen groß genug im Vergleich zur Doppler-Breite der Spektrallinien sind. Kleinere Term-aufspaltungen, die bei Messungen mit optischen Interferometern nicht mehr aufgelöst werden, können in vielen Fällen mit Techniken der Hochfrequenz(Hf)-¹ und Level-Crossing(LC)-Spektroskopie² mit hoher Präzision untersucht werden. Während aber aus Messungen mit optischen Interferometern im allgemeinen neben den Abständen zwischen den Unterniveaus des Terms auch die energetische Anordnung der Niveaus abgeleitet werden kann, läßt sich aus Hf- und LC-Experimenten die Niveauordnung häufig nur unvollständig ermitteln. Dieser Umstand hat zur Folge, daß aus LC- und Hf-Experimenten häufig nicht alle Vorzeichen der atomaren Aufspaltungskonstanten bestimmt werden können, sofern nicht „besondere“ Versuchsbedingungen gewählt werden.

Welche Vorzeichen erst nach einer genaueren Analyse der Niveauordnung experimentell erschlossen werden können, wurde in einer früheren Arbeit³ (im folgenden als I zitiert) untersucht. Wie in I ausgeführt wurde, läßt sich der effektive Hamilton-Operator H , der die Aufspaltung eines Terms in Unter-

niveaus beschreibt und sich beispielsweise aus der Hfs-Wechselwirkung und aus der Wechselwirkung des Atoms mit äußeren elektrischen und magnetischen Feldern zusammensetzt, in einen Realteil \mathcal{R} und einen Imaginärteil \mathcal{I} zerlegen: $H = \mathcal{R} + \mathcal{I}$. Dabei ist \mathcal{R} derjenige Anteil von H , der bei Zeitumkehr invariant bleibt ($\mathcal{R}^T = \mathcal{R}$). Hingegen wechselt \mathcal{I} bei Zeitumkehr das Vorzeichen ($\mathcal{I}^T = -\mathcal{I}$) und ist identisch mit demjenigen Anteil von H , der die Wechselwirkung des Atoms mit äußeren Magnetfeldern beschreibt und der linear von Drehimpulsoperatoren abhängt. Für eine Diskussion von Vorzeichenbestimmungen ist es wesentlich, daß gemäß den Ausführungen in I gleiche Niveauabstände beobachtet werden, unabhängig davon, welcher der vier Hamilton-Operatoren $H = \pm \mathcal{R} \pm \mathcal{I}$ vorliegt. Sind beispielsweise E_i die Energiewerte zu den Eigenzuständen ψ_i von $H = \mathcal{R} + \mathcal{I}$, so ergeben sich für $-H$ die Eigenwerte $-E_i$ mit Eigenzuständen ψ_i , und für die Hamilton-Operatoren $\pm(\mathcal{R} - \mathcal{I})$ findet man die Eigenzustände ψ_i^T mit den Energiewerten $+E_i$ bzw. $-E_i$. Da aus Hf- und LC-Experimenten gewöhnlich nur die Abstände $|E_i - E_j|$ ermittelt werden können, sind dementsprechend besondere Maßnahmen erforderlich, um z. B. aus Amplitude und Form der beobachteten Signale entscheiden zu können,

- 1) ob $H = +\mathcal{R} + \mathcal{I}$ oder $H = -\mathcal{R} + \mathcal{I}$ ist, d. h. welches Vorzeichen \mathcal{R} hat,
- 2) ob $H = +\mathcal{R} + \mathcal{I}$ oder $H = +\mathcal{R} - \mathcal{I}$ ist, d. h. welches Vorzeichen \mathcal{I} hat,
- 3) ob der Hamilton-Operator $+H$ oder $-H$ vorliegt, d. h. welches Vorzeichen der gesamte Hamilton-Operator H hat, wenn beispielsweise $\text{sign } \mathcal{R} / \text{sign } \mathcal{I}$ bereits bekannt ist.

Sonderdruckanforderungen an Prof. Dr. G. v. Oppen, Institut für Strahlungs- und Kernphysik der TU, D-1000 Berlin 37, Rondellstraße 5.



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition “no derivative works”). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

Spezielle Versuchsanordnungen, die z. B. im Falle der Kernresonanzmethode⁴, der Atomstrahlresonanzmethode^{5, 6}, der Doppelresonanzmethode⁷ und der LC-Technik^{3, 8} oder bei Nachweis von Hf-Übergängen nach optischem Pumpen⁹ Vorzeichenbestimmungen gestatten, wurden von verschiedenen Autoren angegeben. Es ist das Ziel dieser Arbeit, ausgehend von Transformationseigenschaften von H , allgemeinere Kriterien für die Verwendbarkeit von Versuchsanordnungen der Hf- und LC-Spektroskopie zu Vorzeichenbestimmungen aufzustellen. Insbesondere werden in Abschnitt 4 für die LC-Technik diejenigen Anregungs- und Beobachtungsbedingungen abgeleitet, die eine Bestimmung der Vorzeichen von R , J und H erlauben (Tabelle 1).

Tab. 1. Abhängigkeit der LC-Signale von den Vorzeichen von R , J und H (nein: Das Vorzeichen des Signals ist unabhängig vom Vorzeichen des Operators; ja: Das Vorzeichen des Signals ist proportional zum Vorzeichen des Operators).

		R	J	H
Lorentz-förmige Signale	$k+k'$ gerade ($\Delta\mu=1$ oder 2)	nein	nein	nein
	$k+k'$ ungerade ($\Delta\mu=1$)	ja	ja	nein
dispersionsförmige Signale	$k+k'$ gerade ($\Delta\mu=1$ oder 2)	nein	ja	ja
	$k+k'$ ungerade ($\Delta\mu=1$)	ja	nein	ja

2. Diskussion von Hf- und LC-Signalen

Um die Diskussion von Hf- und LC-Signalen auf einen konkreten Sachverhalt zu beziehen, mögen in den folgenden Ausführungen Experimente betrachtet werden, in denen die Resonanzstreuung von Licht an freien Atomen untersucht wird, also insbesondere Doppelresonanz- und LC-Experimente. Entsprechende Betrachtungen lassen sich aber auch für andere Bereiche der Hf- und LC-Spektroskopie durchführen, sofern solche Experimente nach folgendem Schema beschrieben werden können: a) Ein Ensemble von Atomen/Atomkernen wird polarisiert, b) Änderung der Polarisation unter dem Einfluß innerer und äußerer Fehler, c) Nachweis einer (Multipol-)Komponente der Polarisation.

Bei Doppelresonanz- und LC-Experimenten interessieren diejenigen Atome, die sich bei Resonanz-

streuung von Licht in den Zuständen eines angeregten Terms befinden. Das Ensemble dieser angeregten Atome möge durch die Dichtematrix $\sigma(t)$ beschrieben werden. Die zeitliche Änderung $\partial\sigma/\partial t$ läßt sich als Summe dreier Anteile beschreiben^{10, 11}:

$$\partial\sigma/\partial t = \partial\sigma^{(1)}/\partial t + \partial\sigma^{(2)}/\partial t + \sigma^{(3)}/\partial t. \quad (1)$$

Die Anregungsmatrix $\partial\sigma^{(1)}/\partial t = \mathcal{F}(t)$ beschreibt die Anregung der Atome durch das einfallende Resonanzlicht. Ist \mathbf{f} der Polarisationsvektor des Lichts (für elliptisch polarisiertes Licht ist \mathbf{f} komplex), so ist

$$\langle \mu | \mathcal{F}(t) | \mu' \rangle = f(t) \sum_m \langle \mu | \mathbf{f} \cdot \mathbf{r} | m \rangle \langle m | \mathbf{f}^* \cdot \mathbf{r} | \mu' \rangle$$

(\mathbf{f}^* Polarisationsvektor mit konjugiert komplexen kartesischen Koordinaten; \mathbf{r} elektrischer Dipoloperator; $|\mu\rangle$, $|m\rangle$ Zustandsvektoren des angeregten Terms bzw. des Grundzustands; $f(t)$ Zeitabhängigkeit der Lichtintensität bei Pulsung oder Modulation der Lichtquelle).

Die Matrix $\partial\sigma^{(2)}/\partial t = -i[H(t), \sigma]$ erfaßt die zeitliche Entwicklung von σ , die von dem Hamilton-Operator $H(t)$ beschrieben wird und die beispielsweise aus der Hfs-Kopplung und aus der Wechselwirkung der Atome mit den (bei Verwendung von Hf-Feldern zeitabhängigen) äußeren Feldern resultiert. Die Zerfallsmatrix $\partial\sigma^{(3)}/\partial t = -\Gamma\sigma$ berücksichtigt den Zerfall der angeregten Atome unter Emission von Fluoreszenzlicht und ist proportional zur Zerfallskonstanten Γ .

Zur Berechnung der Dichtematrix $\sigma(t)$ ist also die Gleichung

$$\partial\sigma/\partial t = \mathcal{F}(t) - i[H(t), \sigma] - \Gamma\sigma \quad (2)$$

zu lösen. Im folgenden sollen nur die periodischen Lösungen berücksichtigt werden und also Einschwingvorgänge vernachlässigt werden. Aus $\sigma(t)$ errechnet sich schließlich die Intensität S_t des beobachteten Resonanzlichts, das die Polarisation \mathbf{g} haben möge, nach der Formel

$$S_t = \text{Spur}[\sigma(t) \cdot \mathcal{G}^+], \quad (3)$$

wobei die Beobachtungsmatrix \mathcal{G} (\mathcal{G}^+ hermitesch konjugiert) analog wie die Anregungsmatrix definiert ist:

$$\langle \mu | \mathcal{G} | \mu' \rangle = \sum_m \langle \mu | \mathbf{g} \cdot \mathbf{r} | m \rangle \cdot \langle m | \mathbf{g}^* \cdot \mathbf{r} | \mu' \rangle.$$

Als Lösung von Gl. (2) hängt die Dichtematrix $\sigma(t)$ von der Anregungsmatrix $\mathcal{F}(t)$ und von den Parametern des Hamilton-Operators $H(t)$ ab. In-

folgedessen ist das Signal S_t eine Funktion der Operatoren \mathcal{F} , H und G , die unter den noch zu betrachtenden Transformationen der Zeitumkehr und der räumlichen Spiegelung nicht invariant sind. Die Frage, welcher von zwei Hamilton-Operatoren H und H' die Aufspaltung eines Terms beschreibt, läßt sich experimentell entscheiden, wenn

$$S_t(\mathcal{F}, H, G) \neq S_t(\mathcal{F}, H', G). \quad (4)$$

Im Hinblick auf die Bestimmung der fraglichen Vorzeichen ergibt sich, daß diese Ungleichung nur unter speziellen Anregungs- und Beobachtungsbedingungen erfüllt ist. Nehmen wir nämlich an, daß H und H' durch eine unitäre Transformation U oder durch eine antiunitäre Transformation A miteinander verknüpft sind, d. h. daß $H' = H^U$ oder $H' = -H^A$ gilt, so ergibt sich für die skalare Größe S_t :

$$S_t(\mathcal{F}, H, G) = S_t(\mathcal{F}^U, H^U, G^U) = S_t(\mathcal{F}^A, -H^A, G^A). \quad (5)$$

Aus diesen Relationen folgt, daß für $H' = H^U$ und $H' = -H^A$ Ungleichung (4) genau dann erfüllt ist, wenn die experimentell durch Änderung der Anregungs- und Beobachtungsbedingungen nachprüfbar Ungleichungen bestehen:

$$S_t(\mathcal{F}, H, G) \neq S_t(\mathcal{F}^U, H, G^U) \text{ für } H' = H^U, \quad (4a)$$

$$S_t(\mathcal{F}, H, G) \neq S_t(\mathcal{F}^A, H, G^A) \text{ für } H' = -H^A. \quad (4b)$$

Ob H oder H^U bzw. $-H^A$ eine Term aufspaltung richtig beschreibt, läßt sich also insbesondere nur dann experimentell entscheiden, wenn Versuchsanordnungen gewählt werden, die zu solchen Anregungs- und Beobachtungsmatrizen führen, welche der Bedingung $\mathcal{F} \neq \mathcal{F}^U$ oder $G \neq G^U$ bzw. $\mathcal{F} \neq \mathcal{F}^A$ oder $G \neq G^A$ genügen.

Wie im nächsten Abschnitt ausführlicher diskutiert wird, sind die vier Hamilton-Operatoren $H = \pm \mathcal{R} \pm \mathcal{J}$ durch unitäre und antiunitäre Transformationen miteinander verknüpft. Auf Grund von (4a, b) ergeben sich daher Einschränkungen für die Anregungs- und Beobachtungsbedingungen, wenn aus Hf- und LC-Experimenten die Vorzeichen $\text{sign } \mathcal{R}$, $\text{sign } \mathcal{J}$ und $\text{sign } H$ abgeleitet werden sollen.

3. Bedingungen für die Verwendbarkeit von Versuchsanordnungen zu Vorzeichenbestimmungen

1. $\text{sign } \mathcal{R}$: Die Operatoren $H = \mathcal{R} + \mathcal{J}$ und $H' = -\mathcal{R} + \mathcal{J} = -H^T$ sind durch die antiunitäre Transfor-

mation der Zeitumkehr miteinander verknüpft. Also läßt sich $\text{sign } \mathcal{R}$ wegen (4b) nur bestimmen, wenn $\mathcal{F} \neq \mathcal{F}^T$ oder $G \neq G^T$ ist. Diese Bedingung bedeutet für alle Experimente, in denen die Resonanzstreuung von Licht untersucht wird, daß zirkularpolarisiertes Licht eingestrahlt oder beobachtet werden muß. Entsprechend ergibt sich für die Atomstrahlresonanzmethode, daß das Vorzeichen von \mathcal{R} nur bestimmt werden kann, wenn im A-Feld oder im B-Feld ein spinpolarisierter Atomstrahl ausgeblendet wird.

2. $\text{sign } \mathcal{J}$: Die Operatoren $H = \mathcal{R} + \mathcal{J}$ und $H' = \mathcal{R} - \mathcal{J}$ sind durch mindestens eine Spiegelung M miteinander verknüpft, falls die Richtungen aller äußeren Felder in eine Ebene fallen. Diese Bedingung ist sicher erfüllt, wenn nur zeitlich konstante, homogene elektrische und magnetische Felder auf die Atome einwirken, also insbesondere bei allen LC-Experimenten. Unter der Bedingung $\mathcal{R} - \mathcal{J} = (\mathcal{R} + \mathcal{J})^M$ läßt sich wegen (4a) $\text{sign } \mathcal{J}$ nur dann bestimmen, wenn $\mathcal{F} \neq \mathcal{F}^M$ oder $G \neq G^M$ ist. Für Untersuchungen der Resonanzstreuung von Licht ergibt sich also die notwendige Bedingung, daß $\mathbf{f} \neq \mathbf{f}^M$ oder $\mathbf{g} \neq \mathbf{g}^M$ für alle geeigneten Spiegelungen M ist. Allerdings existieren solche Spiegelungen nicht immer für Experimente der Hf-Spektroskopie, nämlich wenn ein um die Richtung eines statischen Magnetfeldes \mathcal{H}_z rotierendes Hf-Feld verwendet wird. Ein solches Feld induziert nur Übergänge, wenn die Larmor-Präzession der Atome den gleichen Drehsinn wie das Hf-Feld hat. Ein rotierendes Hf-Feld ermöglicht daher die Bestimmung der Vorzeichen von g_J - oder g_I -Faktoren, sofern nur die Zeeman-Niveaus ungleich besetzt werden.

3. $\text{sign } H$: Wieder unter der Voraussetzung, daß eine geeignete Spiegelung M existiert, sind die Operatoren H und $H' = -H = -H^{MT}$ durch die antiunitäre Produkttransformation $M \cdot T$ miteinander verknüpft, und $\text{sign } H$ läßt sich dann nur bestimmen, wenn $\mathcal{F} \neq \mathcal{F}^{MT}$ oder $G \neq G^{MT}$ ist.

Auf Grund dieser Bedingung läßt sich z. B. verstehen, weshalb die magnetische Kernresonanzmethode von Bloch⁴ die Vorzeichen der g_I -Faktoren zu bestimmen erlaubt, nicht aber diejenige von Purcell¹². In beiden Fällen präzedieren die Atomkerne unter dem Einfluß eines statischen Magnetfeldes \mathcal{H}_z und eines in x -Richtung oszillierenden Magnetfeldes \mathcal{H}_1 (bei Vernachlässigung von Kristallfeldern). Der die Präzessionsbewegung der Atomkerne beschreibende Hamilton-Operator $H(t)$ ändert sowohl bei der Spiegelung M an der xz -Ebene als auch bei Zeitumkehr T das Vorzeichen, d. h. $H' = -H = -H^{MT}$.

Wegen (4b) ergibt sich also das Vorzeichen des g_I -Faktors nur, wenn die Anfangsmagnetisierung M_z (\sim Anregungsmatrix) oder die beobachtete Quermagnetisierung $M_x(t)$ (Purcell) bzw. $M_y(t)$ (Bloch) bei der Transformation MT nicht invariant bleiben. Tatsächlich ändert nur $M_y(t)$ bei dieser Transformation das Vorzeichen, und folglich ermöglicht nur die Nachweistchnik von Bloch eine Vorzeichenbestimmung.

4. Vorzeichenbestimmungen mit der LC-Technik

In Abschnitt 3 ergaben sich notwendige Bedingungen für die Versuchsanordnung, die erfüllt sein müssen, wenn aus Hf- und LC-Experimenten die Vorzeichen von \mathcal{R} , \mathcal{I} und H bestimmt werden sollen. In diesem Abschnitt soll für LC-Signale detailliert untersucht werden, unter welchen Anregungs- und Beobachtungsbedingungen die Ungleichungen (4a, b) erfüllt sind. In einfacher Weise ergeben sich damit die Versuchsbedingungen, unter denen aus LC-Experimenten auf die Vorzeichen von \mathcal{R} , \mathcal{I} und H geschlossen werden kann, und die teilweise bereits in I und in Ref. 8 angegeben wurden.

Falls wie in einem LC-Experiment die Atome nur zeitlich konstanten elektrischen und magnetischen Feldern ausgesetzt sind, ergibt sich bei konstanter Intensität des anregenden Lichts formal die folgende stationäre Lösung von Gleichung (2):

$$\langle \mu | \sigma | \mu' \rangle = \langle \mu | \mathcal{F} | \mu' \rangle / [\Gamma + i(E_\mu - E_{\mu'})], \quad (6)$$

wobei E_μ die Energiewerte der Eigenzustände $|\mu\rangle$ des angeregten Terms sind. Die Resonanzlichtintensität errechnet sich dann nach der Breitschen Formel¹³, die sich aus Gl. (3) ergibt:

$$S(\mathcal{F}, H, \mathcal{G}) = \sum_{\mu, \mu'} \frac{\langle \mu | \mathcal{F} | \mu' \rangle \langle \mu | \mathcal{G} | \mu' \rangle^*}{\Gamma + i(E_\mu - E_{\mu'})}. \quad (7)$$

Auf Grund dieser Beziehung läßt sich die Abhängigkeit der Signale $S(\mathcal{F}, H, \mathcal{G})$ von den Anregungs- und Beobachtungsbedingungen diskutieren¹⁴. Im Hinblick auf die Vorzeichenbestimmungen ist zu untersuchen, wie sich $S(\mathcal{F}, H, \mathcal{G})$ ändert, wenn man von \mathcal{F} und \mathcal{G} zu den mit T, M oder M·T transformierten Matrizen übergeht. Zu diesem Zweck zerlegen wir die Matrizen \mathcal{F} und \mathcal{G} wie in Ref. 14 nach den Multipolanteilen $\mathcal{F}^{(k)}$ und $\mathcal{G}^{(k')}$:

$$\mathcal{F} = \sum_{k'=0,1,2} (-1)^k \mathcal{F}^{(k)} \quad \text{bzw.} \quad \mathcal{G} = \sum_{k=0,1,2} (-1)^{k'} \mathcal{G}^{(k')}.$$

Ausgehend von Formel (3) aus Ref. 14 findet man für das Transformationsverhalten der Matrizen $\mathcal{F}^{(k)}$

(entsprechend für $\mathcal{G}^{(k')}$):

$$\begin{aligned} \langle \mu | \mathcal{F}^{(k)T} | \mu' \rangle &= (-1)^k \langle \mu | \mathcal{F}^{(k)} | \mu' \rangle \\ \langle \mu | \mathcal{F}^{(k)M} | \mu' \rangle &= (-1)^k \langle \mu | \mathcal{F}^{(k)} | \mu' \rangle^* \\ \langle \mu | \mathcal{F}^{(k)MT} | \mu' \rangle &= \langle \mu | \mathcal{F}^{(k)} | \mu' \rangle^* \end{aligned} \quad (8)$$

(für Spiegelungen an der xz -Ebene).

Aus diesen Relationen findet man mit Formel (7) diejenigen LC-Signale, die in bezug auf T, M und MT die Ungleichungen (4a, b) erfüllen. Dazu unterscheiden wir die LC-Signale nach folgenden Gesichtspunkten:

- nach dem $\Delta\mu$ -Wert ($\Delta\mu = \mu - \mu' = 1$ oder 2) der im Kreuzungspunkt entarteten Terme,
- nach der Form (Lorentz- oder Dispersionsform),
- bei $\Delta\mu = 1$ -Crossings danach, ob $k + k'$ gerade oder ungerade ist.
(Für $\Delta\mu = 2$ -Crossings ist $k + k' = 4$ stets gerade.)

Auf Grund der Relationen (8) zeigt sich, daß die so definierten Signalanteile, die sich im allgemeinen überlagern können, beim Übergang zu den mit T, M und MT transformierten Matrizen entweder unverändert bleiben oder das Vorzeichen wechseln. Dementsprechend kann das Vorzeichen dieser Signalanteile von den Vorzeichen von \mathcal{R} , \mathcal{I} bzw. H abhängen. Im einzelnen sind die Ergebnisse in Tab. 1 zusammengestellt. Insbesondere zeigt sich:

- Das Vorzeichen von H läßt sich nur aus dispersionsförmigen Signalanteilen ermitteln. Das einzige Lorentz-förmige Signal, das überhaupt von den fraglichen Vorzeichen abhängt, ergibt nur $\text{sign } \mathcal{R} / \text{sign } \mathcal{I}$.
- Das Vorzeichen von \mathcal{R} ergibt sich nur aus Untersuchungen von $\Delta\mu = 1$ -Crossings, und zwar nur dann, wenn $k + k'$ ungerade ist. Wie zu erwarten, ist also zirkularpolarisiertes Licht einzustrahlen oder zu beobachten.

Aus Tab. 1 wird ersichtlich, unter welchen Anregungs- und Beobachtungsbedingungen grundsätzlich die Vorzeichen $\text{sign } \mathcal{R}$, $\text{sign } \mathcal{I}$ und $\text{sign } H$ aus LC-Signalen bestimmt werden können. Um allerdings explizit aus den Vorzeichen der LC-Signale auf die Niveaureihenfolge und damit auf die Vorzeichen der Aufspaltungskonstanten zu schließen, ist eine genauere Diskussion der Vorzeichen von LC-Signalen erforderlich, wie sie in Ref. 14 und in I durchgeführt wurde.

- ¹ H. Kopfermann, Nuclear Moments, Academic Press, New York 1958.
- ² H. Bucka, J. Phys. Radium **30**, Suppl. C 1–3 [1969].
- ³ G. v. Oppen u. H. W. Popp, Physica **63**, 104 [1973].
- ⁴ F. Bloch, Phys. Rev. **70**, 460 [1946].
- ⁵ I. I. Rabi, Phys. Rev. **49**, 324 [1936] und **51**, 652 [1937].
- ⁶ S. Millman, Phys. Rev. **55**, 628 [1939].
- ⁷ G. v. Oppen, Z. Physik **227**, 207 [1969].
- ⁸ H. H. Stroke, G. Fulop, S. Kelpner u. O. Redi, Phys. Rev. Letters **21**, 61 [1968].
- ⁹ J. C. Lehmann, Phys. Rev. **178**, 207 [1969].
- ¹⁰ J. P. Barrat, Proc. Roy. Soc. London A **263**, 371 [1961].
- ¹¹ C. Cohen-Tannoudji, Ann. Phys. (Paris) **7**, 423 [1962].
- ¹² E. Purcell, H. Torrey u. R. Pound, Phys. Rev. **69**, 37 [1946].
- ¹³ G. Breit, Rev. Mod. Phys. **2**, 91 [1933].
- ¹⁴ G. v. Oppen, Physica **63**, 95 [1973].

Die physikalischen Grundlagen der Uran²³⁵-Anreicherung nach dem Trenndüsenverfahren

II. Vergleich der leichten Zusatzgase H₂, He und D₂

W. Bier, G. Eisenbeiß und G. Heeschen

Institut für Kernverfahrenstechnik der Universität und des Kernforschungszentrums Karlsruhe

(Z. Naturforsch. **28 a**, 1267–1272 [1973]; eingegangen am 18. April 1973)

The Physics of Uranium²³⁵-Enrichment in the Separation Nozzle Process
II. A comparison of the added light gases H₂, He, and D₂

The effects of the added light gases H₂, He, and D₂ on the separation of the uranium isotopes in the separation nozzle process are compared experimentally. The superiority of H₂ under economically optimum conditions turns out to be caused essentially by its less dissipative nozzle flow characterized by a higher Reynolds number. This advantage is decreased if differences in the flow velocity lose their effects on isotope separation, e. g. at higher expansion ratios. Thus, with He added, the isotope separation effects can get closer to those observed with H₂; D₂ even can get better than H₂, because He and D₂ prevent more efficiently UF₆ from concentrating rapidly at the outer nozzle wall.

I. Einleitung

Bei der Trennung der Uranisotope nach dem Trenndüsenverfahren wird als Verfahrensgas ein Gemisch aus Uranhexafluorid (UF₆) und einem leichten Zusatzgas verwendet¹. Dabei übt, wie die theoretische Analyse des Trennvorganges gezeigt hat, das leichte Zusatzgas in zweifacher Hinsicht einen positiven Einfluß auf die Isotopentrennung aus²: erstens wird durch die Verminderung der mittleren Masse des Verfahrensgases die Strömungsgeschwindigkeit in der Düse und damit die entmischende Zentrifugalkraft gesteigert, und zweitens verzögert das Zusatzgas die Einstellung der barometrischen Dichteverteilung des UF₆, wodurch die der Entmischung entgegenwirkende Konzentrationsdiffusion kleiner wird.

Die bisherigen Untersuchungen wurden weitgehend mit Helium oder Wasserstoff als Zusatzgas durchgeführt. Dabei zeigte es sich, daß unter den

zur Zeit als optimal geltenden Betriebsbedingungen Wasserstoff zu deutlich günstigeren spezifischen Aufwandsgrößen führt als Helium³. Andererseits bedingt die chemische Reaktionsfähigkeit des Wasserstoffs und seine stärkere Abtrennung vom UF₆ technische Nachteile, die den aus den Aufwandsgrößen ablesbaren Vorzug des Wasserstoffs gegenüber Helium teilweise kompensieren können. Insbesondere bei wesentlichen Veränderungen des Trennsystems, wie sie bei der Weiterentwicklung des Trenndüsenverfahrens in Erwägung zu ziehen sind, muß daher damit gerechnet werden, daß Helium auch zu wirtschaftlich günstigeren Ergebnissen führen kann. Man ist aus diesem Grund an einer möglichst genauen Kenntnis der unter verschiedenen Betriebsbedingungen zu erwartenden Unterschiede der Wirkung der leichten Zusatzgase interessiert.

Um die empirischen Kenntnisse der unterschiedlichen Wirkung der Zusatzgase zu erweitern, wurden für die vorliegende Arbeit systematische Trennversuche nicht nur mit den Zusatzgasen Wasserstoff und Helium, sondern auch mit Deuterium durchgeführt. Durch Vergleich dieser Ergebnisse mit den

Sonderdruckanforderungen an das Institut für Kernverfahrenstechnik der Kernforschungszentrums Karlsruhe, D-7500 Karlsruhe, Postfach 3640.