

## MASTER

### Botsinggeïnduceerde overgangen binnen het kortlevende $\text{Ne}^{**}\{(2p)5(3s)\}$ -multiplet : semiklassieke theorie versus experiment en quantummechanica

van Hoek, W.B.M.

*Award date:*  
1987

[Link to publication](#)

#### **Disclaimer**

This document contains a student thesis (bachelor's or master's), as authored by a student at Eindhoven University of Technology. Student theses are made available in the TU/e repository upon obtaining the required degree. The grade received is not published on the document as presented in the repository. The required complexity or quality of research of student theses may vary by program, and the required minimum study period may vary in duration.

#### **General rights**

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain

#### **Take down policy**

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

Technische Universiteit Eindhoven  
Faculteit der Technische Natuurkunde  
Werkgroep Atomaire en Optische Wisselwerkingen

Botsinggeïnduceerde overgangen binnen het  
kortlevende  $\text{Ne}^{**}\{(2p)^5(3s)\}$ -multiplet :  
semiklassieke theorie versus experiment  
en quantummechanica.

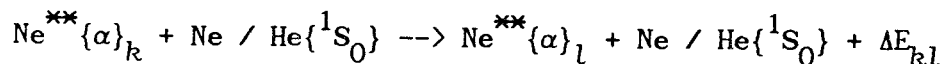
W.B.M. van Hoek

Afstudeerverslag VDF/NO 87-14 juni 1987

Dit afstudeerwerk werd verricht onder leiding van Dr. H.C.W. Beijerinck  
en prof. B.J. Verhaar, en met directe begeleiding van ir. M.P.I. Manders.

## SAMENVATTING

Er is onderzoek verricht naar het inelastische botsingsproces



De werkzame doorsnedes voor dit proces, gemeten in een gekruiste-bundel experiment, blijken sterk afhankelijk van de botsingsenergie en van de oriëntatie van het elektronisch impulsmoment  $\vec{J}$  van de  $\text{Ne}^{**}\{(2p)^5(3p)\}_k$  begintoestand.

Volledig quantummechanische gekoppelde kanalenberekeningen leveren resultaten die goed met het experiment overeenstemmen, maar hebben een "black-box"-karakter.

Teneinde meer inzicht in het botsingsproces te verkrijgen is voor  $\text{Ne}^{**} + \text{He}$  een semiklassiek model ontwikkeld, dat de inelastische overgangen mede verklaart uit de aanwezigheid van avoided crossings tussen de desbetreffende adiabatische potentiaalcurven. Dit model is toegepast op overgangen binnen het  $\text{Ne}^{**}\{(2p)^5(3p)\}_{k=4,5,6,7}$ -multiplet (Paschen nummering). Zowel de grootte van botsingsdoorsnedes als de waargenomen oriëntatie- en energieafhankelijkheden laten zich semiklassiek verklaren.

## INHOUDSOPGAVE

	<u>pag.</u>
1. <u>Inleiding</u>	1
2. <u>Semiklassieke beschrijving</u>	6
2.1. Botsingsdynamica	6
2.2. Moleculaire Potentialen	10
2.2.1. Systeem Ne <sup>**</sup> -He	10
2.2.2. Systeem Ne <sup>**</sup> -Ne	14
2.3. Semiklassieke theorie voor Radiële Koppeling	14
2.3.1. Landau-Zener theorie	14
2.3.2. Demkov theorie	24
2.3.3. Toepassingen	25
2.4. Rotationale koppeling	27
2.4.1. Rotatiekoppeling	28
2.4.2. "Locking"	29
2.4.3. Klassieke deeltjesbanen	31
2.5. Semiklassiek model	31
2.5.1. "Single-curve-crossing Model"	31
2.5.2. "Multiple-curve-crossing Model"	34
2.6. Werkzame doorsnedes	36
2.6.1. Berekening van werkzame doorsnedes	36
2.6.2. Oriëntatie-effecten	37
2.6.3. Energieafhankelijkheid van Botsingsdoorsnedes	39
3. <u>Experiment</u>	40
3.1. Gekruiste-Bundel Experiment	40
3.2. Experimentele fluorescentiesignalen	42
3.2.1. Directe- en botsingsgeïnduceerde fluorescentie	42
3.2.2. Experimentele problemen en vereisten	43
3.3. Minibundel-apparaat	44
3.3.1. Bundels	44
3.3.2. Optisch detectiesysteem	48
3.4. Meettechniek	49
3.4.1. Meetroutine	49
3.4.2. Meetstrategie	51
3.5. Calibratie van het experiment	53
3.5.1. Absolute botsingsdoorsnedes	53
3.5.2. Signaal calibratie	54
3.5.3. Uitlijning	58

4.	<u>Polarisatieeffecten in botsingsdoorsnedes</u>	60
4.1.	Gepolariseerde $\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_k$ -atomen	60
4.2.	Gepolariseerde Werkzame Doorsnedes	61
4.3.	Gepolariseerde straling	64
4.4.	Experimentele positiebepaling	67
4.5.	Oriëntatie-effecten in het systeem $\text{Ne}^{**}$ -He	69
4.5.1.	Experimenteel	70
4.5.2.	Quantummechanisch	72
4.5.3.	Semiklassiek	74
4.6.	Oriëntatie-effecten in het systeem $\text{Ne}^{**}$ -Ne	88
4.6.1.	Experimenteel	89
4.6.2.	Discussie	89
5.	<u>Energieafhankelijkheid (I)</u>	94
5.1.	Energieafhankelijkheid in het systeem $\text{Ne}^{**}$ -He	94
5.1.1.	Experimenteel	94
5.1.2.	Quantummechanisch	96
5.1.3.	Semiklassiek	96
5.2.	Energieafhankelijkheid in het systeem $\text{Ne}^{**}$ -Ne	98
5.2.1.	Experimenteel	98
5.2.2.	Discussie	100
6.	<u>Energieafhankelijkheid (II): TOF-metingen</u>	101
6.1.	Theorie van looptijdmetingen	101
6.2.	TOF-metingen in de Minibundel-1 opstelling	105
6.3.	TOF snelheidsmetingen	107
6.4.	TOF-metingen van Botsingsdoorsnedes	109
6.5.	Verwerking van TOF-metingen	110
6.6.	Meetresultaten voor het systeem $\text{Ne}^{**}$ -He	113
6.6.1.	Experimenteel	113
6.6.2.	Semiklassiek	115
7.	<u>Conclusies en suggesties</u>	116
	<u>Referenties</u>	118
	<u>Appendix A</u>	121

## HOOFDSTUK 1 : INLEIDING

### **Bundelexperimenten**

In de atomaire botsingsfysica worden bij de bestudering van elastische, inelastische of reactieve botsingen tussen atomen en/of moleculen vaak bundels van deze deeltjes gebruikt. De goed-definieerbare dichtheidsverdelingen, snelheidsverdelingen en electronische toestanden van de botsingspartners maken dat gekruiste-bundel experimenten zeer nauwkeurige en gedetailleerde informatie kunnen opleveren omtrent de fysische wisselwerkingen die het botsingsproces bepalen.

In de werkgroep Atomaire en Optische Wisselwerkingen van de vakgroep Deeltjesfysica zijn deze bundeltechnieken ver ontwikkeld. Ze worden toegepast in een breed scala van onderzoek-projecten betreffende interacties van Neon-atomen met een laserveld [WIJ87], intra-multiplet-mixing in Neon-atomen [VRE86], elastische verstrooiing [KER87] en inelastische botsingsprocessen als Penning-ionisatie [SCH86] van edelgas-atomen en kleine moleculen, en rotatie-/vibratie-excitatie van moleculen [BOG87]. Sinds kort is het werkgebied uitgebreid met een studie naar het gedrag van gaslagen op oppervlakken ("ets-processen" uit de IC-technologie) en processen van excimeervorming [VRA87].

Een algemeen kenmerk van de experimenten vormt het feit dat tenminste één van de botsingspartners, meestal een metastabiel edelgas-aatoom, een relatief grote afstand tot het botsingsgebied moet afleggen. Dit maakt een snelheids-opgeloste studie van de botsingsprocessen mogelijk (zogenaamde looptijd-metingen). Daarnaast kan ook toestand-selectie plaatsvinden (door optisch pompen van de metastabiele atomen met een laser). De atomen die onderwerp van studie vormen kunnen, behalve in de grondtoestand (R), in een metastabiele- ( $R^*$ ) of kortlevende- ( $R^{**}$ ) toestand verkeren.

Metastabiele edelgas-atomen  $R^*$  bevatten één electron dat uit de buitenste (np)-electronenschil naar de eerste hoger gelegen (n+1)s-schil geëxciteerd is. Deze electron-core configuratie splitst ten gevolge van de Coulomb- en spin-baan-wisselwerkingen op in een viertal fijnstructuurniveau's. Hiervan zijn er twee metastabiel (dwz. ze kunnen geen stralingsovergang naar de grondtoestand maken) met een relatief lange levensduur ( $\tau > 1$  s) die ze geschikt maakt voor bundelexperimenten.

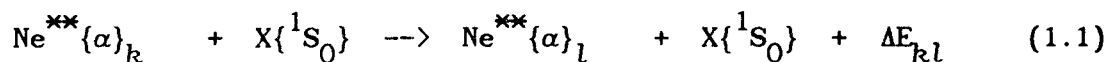
Metastabiele  $R^*$ -atomen worden geproduceerd in gasontladingsbronnen met een brede supersone snelheidsverdeling in het thermische (100-500 meV) of superthermische (1-10 eV) gebied.

Kortlevende edelgas-atomen  $R^{**}$  kunnen worden gevormd door het  $(n+1)s$ -electron van het metastabiel atoom met behulp van een resonant laserveld nogmaals te exciteren naar de volgende  $(n+1)p$ -schil. Deze configuratie splitst op in een tiental fijnstructuurniveau's, alle met een zeer korte levensduur ( $\tau \approx 20$  ns). Kortlevende  $R^{**}$ -atomen kunnen als botsingspartner fungeren mits ze in het botsingsvolume zelf geproduceerd worden. Vanwege de kleine energie-opsplitsing ( $\Delta E_{1,10} = 584$  meV voor het  $Ne^{**}$ -multiplet) zijn inelastische overgangen tussen verschillende toestanden tijdens de botsing goed mogelijk. Dit proces van "intra-multiplet-mixing" wordt in dit werk beschreven voor de systemen  $Ne^{**}-He$  en  $Ne^{**}-Ne$ .

### Intra-multiplet-mixing in Neon

Voor Neon wordt het eerste aangeslagen  $Ne^*\{(2p)^5(3s)\}$ -multiplet gevormd door vier fijnstructuurniveau's  $^3P_{0,1,2}$  en  $^1P_1$ . We gebruiken de Russell-Saunders  $^{2S+1}L_J$ -notatie, met de quantumgetallen  $L$ ,  $S$  en  $J$  voor respectievelijk het totale baanimpulsmoment  $\vec{L}$ , de totale spin  $\vec{S}$  en het totale elektronisch impulsmoment  $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ . Van dit multiplet zijn de  $^3P_0$  en  $^3P_2$  toestanden metastabiel. Het tweede aangeslagen  $Ne^{**}\{(2p)^5(3p)\}$ -multiplet telt tien toestanden  $Ne^{**}\{(2p)^5(3p)\}_k \equiv \{\alpha\}_k$ , waarbij  $k$  loopt van  $1, \dots, 10$  met dalende interne energie. In Fig. 1.1 wordt het desbetreffende energie-niveauschema van Neon getoond.

In het Minibundel-1 experiment worden botsinggeïnduceerde overgangen binnen het kortlevende  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$ -multiplet bestudeerd. De reactievergelijking voor dit proces luidt



De waarschijnlijkheid waarmee een  $Ne^{**}$ -aatom door inelastische botsing met een atoom  $X$  (in ons geval  $He$  of  $Ne$ ) overgaat van de  $\{\alpha\}_k$ -toestand in een  $\{\alpha\}_l$ -toestand, volgt rechtstreeks uit de verhouding van de dichtheden van genoemde toestanden. Deze verhouding bepalen we experimenteel door

detectie van de fluorescentiestraling, die uitgezonden wordt bij verval van de kortlevende  $\text{Ne}^{**}$ -atomen naar een of meerdere  $\text{Ne}^*\{(2p)^5(3s)\}$ -toestanden. We mogen excitatie-overdracht tussen het  $\text{Ne}^{**}$ -atoom en de botsingspartner X verwaarlozen.

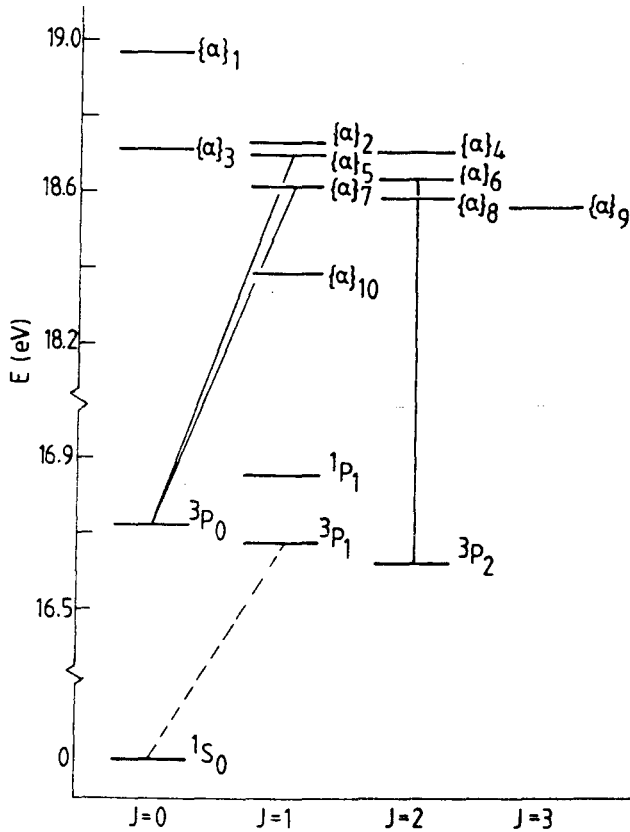


Fig.1.1.: Energie-niveau schema van de geexciteerde  $\text{Ne}^*\{(2p)^5(3s)\}$  en  $\text{Ne}^{**}\{(2p)^5(3p)\}$  toestanden, gegroepeerd naar hun totaal elektronisch impulsmoment quantumgetal  $J$ .

De zeer korte levensduur van de  $\text{Ne}^{**}$ -atomen en de kleine werkzame doorsnedes voor het botsingsproces stellen zware eisen aan de opzet van het experiment. Dit soort onderzoek van intra-multiplet-mixing is dan ook tamelijk uniek. Tot het weinige vergelijkingsmateriaal op dit gebied behoren gascel-experimenten met He en Ne, waarbij zogenaamde rate-constants voor de genoemde inelastische overgangen worden bepaald [HEN82, COO78].



Een theoretische beschrijving van het proces van intra-multiplet-mixing is in het verleden tot stand gekomen in samenwerking met de werkgroep Verhaar van de vakgroep Theoretische Natuurkunde [BEI83, MAR85, DRI85]. Voor het systeem  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$  is een volledig quantummechanisch gekoppelde-kanalen programma ontwikkeld, dat als input potentialen gebruikt die de wisselwerkingen van de botsende deeltjes beschrijven. Deze potentialen zijn afgeleid uit beschikbare model-potentialen [HEN82]. Het nadeel van deze quantummechanische aanpak is dat er geen direct aanschouwelijk verband bestaat tussen de aard van de input-potentialen en de karakteristieken van de resulterende werkzame doorsnedes.

De uitbreiding van deze quantummechanische beschrijving tot het systeem  $\text{Ne}^{**}\text{-Ne}$  vormt een probleem op zich. Weliswaar bestaan ook voor dit systeem model- [HEN82] cq ab initio- [OOH74] berekeningen. Echter, introductie van ladingssymmetrie en de invloed van identieke kernen op het verloop van het botsingsproces maken een volledig nieuwe aanpak van het probleem noodzakelijk. Hiermee is onlangs aangevangen [BOO87].

Teneinde de fysische aspecten van het botsingsproces van Vgl. (1.1) nader te bestuderen is besloten tot een semiklassieke analyse van de botsing. Uitgaande van de principes uit de Landau-Zener theorie [LAN32] kunnen we het optreden van botsinggeïnduceerde overgangen binnen het  $\text{Ne}^{**}$ -multiplet verklaren uit onder andere de aanwezigheid van zogenaamde "avoided-crossings" van de moleculaire potentiaalcurven die de deeltjeswisselwerkingen beschrijven. Deze semiklassieke aanpak geeft voor het systeem  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$  opmerkelijke resultaten, die we zullen confronteren met de experimenteel bepaalde en de quantummechanisch berekende werkzame doorsnedes. Ook voor een "nulde-orde" beschrijving van het systeem  $\text{Ne}^{**}\text{-Ne}$  komt het gehanteerde model in aanmerking.

## Opzet rapport

We beschrijven in dit verslag de invloed van de asymptotische oriëntatie van het elektronisch impulsmoment en van de botsingsenergie op het tot stand komen van botsinggeïnduceerde overgangen binnen het kortlevende  $\text{Ne}^{**}$ -multiplet. Hierbij beperken we ons tot de twee genoemde botsings-systemen en tot de sub-categorie  $\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_{k=4,5,6,7}$  toestanden. Voor bijna

alle overgangen tussen deze toestanden konden de werkzame doorsnedes experimenteel bepaald worden.

In hoofdstuk 2 leggen we de basis voor de semiklassieke beschrijving. De opzet van het Minibundel-1 experiment, speciaal ontwikkeld voor experimenten met kortlevende deeltjes, wordt in hoofdstuk 3 besproken. Hierbij wordt veel aandacht besteed aan de ver doorgevoerde automatisering van het experiment en aan de calibratie van absolute botsingsdoorsnedes. De experimentele resultaten presenteren we in de hoofdstukken 4 en 5, waarbij een confrontatie met resultaten van zowel de semiklassieke als quantummechanische berekeningen plaats vindt.

In gekruiste-bundel experimenten wordt vaak gebruik gemaakt van de zogenaamde Time-Of-Flight diagnosetechniek. Snelheid-opgeloste metingen blijken ook in de compacte Minibundel-1 opstelling uitvoerbaar. De toegepaste meettechniek komt in hoofdstuk 6 aan de orde, samen met de eerste meetresultaten.

Tot slot vat hoofdstuk 7 de belangrijkste conclusies van dit werk samen.

## HOOFDSTUK 2: SEMIKLASIEKE BESCHRIJVING

### 2.1. Botsingsdynamica

In het massamiddelpunt-systeem wordt het botsingsproces van Vgl. (1.1) beschreven door een golf functie  $\psi(\vec{r}, \vec{R}, t)$ , die afhangt van de kern-verbindingvector  $\vec{R}$  en van de electronencoördinaten  $\vec{r}$ . Zij voldoet aan de tijdafhankelijke Schrödingervergelijking

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\vec{r}, \vec{R}, t) = H_{\text{tot}} \cdot \psi(\vec{r}, \vec{R}, t) \quad (2.1)$$

De totale Hamiltoniaan  $H_{\text{tot}}$  bestaat uit de kinetische energie operator  $T_n$  van de relatieve kernbeweging en de moleculaire electronen-hamiltoniaan  $H_{\text{mol}}$ . De operator  $T_n$  heeft de radiële en rotationele componenten  $T_{\text{rad}}$  en  $T_{\text{rot}}$ . De Hamiltoniaan  $H_{\text{mol}}$  beschrijft de moleculaire energieën en interacties en bevat de atomaire Hamiltonianen  $H_{\text{at}}^{\text{Ne}^{***}}$  en  $H_{\text{at}}^{\text{X}}$ , alsmede de operator  $V_I^{\text{Ne}^{***}-\text{X}}$  van de moleculaire, fysische wisselwerking tussen  $\text{Ne}^{***}$ - en X-atomen. In formulevorm:

$$\begin{aligned} H_{\text{tot}} &= T_n + H_{\text{mol}} \\ &= T_{\text{rad}} + T_{\text{rot}} + H_{\text{at}}^{\text{Ne}^{***}} + H_{\text{at}}^{\text{X}} + V_I^{\text{Ne}^{***}-\text{X}} \end{aligned} \quad (2.2)$$

Via  $\psi(\vec{r}, \vec{R}, t) = \psi(\vec{r}, \vec{R}) e^{-iEt/\hbar}$ , met E de totale massamiddelpunts-energie van het systeem, drukken we de algemene tijdafhankelijke golf functie  $\psi(\vec{r}, \vec{R}, t)$  uit in de golf functie  $\psi(\vec{r}, \vec{R})$ , die oplossing is van de stationaire Schrödingervergelijking

$$(T_n + H_{\text{mol}}) \psi(\vec{r}, \vec{R}) = E(\vec{r}, \vec{R}) \quad (2.3)$$

Bij de lage botsingsenergieën ( $E < 0.5$  eV) van onze experimenten bewegen de electronen veel sneller dan de kernen, zodat de electronen-golffuncties zich bij benadering adiabatisch zullen kunnen aanpassen aan de

kernbeweging. Er is als het ware sprake van een quasi-moleculair systeem, waarbij de kernbeweging wordt bepaald door de adiabatische, ofwel moleculaire, potentiaalcurves. Zoals we zullen zien, zijn er echter nog wel overgangen tussen adiabatische toestanden mogelijk, als gevolg van de kernbeweging, zowel radieel als rotationeel.

Het botsingsproces verloopt onder de restrictie van enkele behoudswetten. Om te beginnen is het totaal impulsmoment  $\vec{P}$  een behouden grootheid. Het totaal impulsmoment is samengesteld uit het rotationeel impulsmoment  $\vec{N}$  van de kernbeweging en het totaal elektronisch impulsmoment  $\vec{J}$  van beide atomen  $\text{Ne}^{**}$  en  $X$ :  $\vec{P} = \vec{N} + \vec{J}$ . Aangezien we er van uit mogen gaan, dat de botsingspartner  $X$  gedurende de botsing in de grondtoestand blijft ( $\vec{J}_X = 0$ ), geldt dat  $\vec{J} = \vec{J}_{\text{Ne}^{**}}$ . Daarnaast is altijd sprake van inversiesymmetrie ten opzichte van de oorsprong (het massamiddelpunt van het systeem), zodat de totale pariteit  $\Pi$  behouden blijft. Eigen aan een twee-atomig moleculair systeem is bovendien omwentelingssymmetrie rond de internucleaire as. Hiermee is het bekende moleculaire quantumgetal  $\Omega = |M_z|$  geassocieerd, met  $M_z$ , het magnetisch quantumgetal van het elektronisch impulsmoment  $\vec{J}$  ten opzichte van de lichaamsvaste internucleaire as  $z'$ . Dit quantumgetal  $\Omega$  wordt met name belangrijk bij kleine internucleaire afstanden. Voor het  $\text{Ne}^{**}\text{-Ne}$  systeem dienen we tevens rekening te houden met de invloeden van lading- en kerngelijkheid.

Bij een adiabatisch georiënteerde aanpak van het  $\text{Ne}^{**}\text{-X}$  botsingsprobleem worden de bewegingen van elektronen en kernen in eerste instantie volledig gescheiden. De adiabatische eigentoestanden  $|\alpha_k \Omega_k(R)\rangle$  van de moleculaire elektronen-hamiltoniaan  $H_{\text{mol}}$  zijn slechts parametrisch afhankelijk van de kernafstand  $R$ :

$$H_{\text{mol}}(R) |\alpha_k \Omega_k(R)\rangle = E_k^\Omega(R) |\alpha_k \Omega_k(R)\rangle \quad (2.4)$$

Als eerste zullen we straks stilstaan bij de oplossing van deze vergelijking, in het bijzonder de bepaling van de adiabatische potentiaalcurves  $E_k^\Omega(R)$ . In de adiabatische representatie is de moleculaire Hamiltoniaan  $H_{\text{mol}}$  diagonaal. De representatie-matrices voor de kinetische energie operatoren  $T_{\text{rad}}$  en  $T_{\text{rot}}$  zijn niet-diagonaal [MAR84] en zorgen daarom voor radiële respectievelijk rotationele koppelingen tussen adiabatische eigentoestanden  $|\alpha_k \Omega_k(R)\rangle$ . Hierbij koppelt  $T_{\text{rad}}$  toestanden  $|\alpha\Omega\rangle$  en  $|\alpha'\Omega\rangle$  binnen een vaste  $\Omega$ -klasse, terwijl  $T_{\text{rot}}$  koppelingen tussen toestanden  $|\alpha\Omega\rangle$

en  $|\alpha\Omega'\rangle$  uit verschillende  $\Omega$ -klassen met zich mee brengt. Deze effecten van de kernbeweging kunnen zowel quantummechanisch als semiklassiek behandeld worden.

### Quantummechanische beschrijving

In een volledig quantummechanische beschrijving [MAR85] wordt de golf functie  $\Psi(\vec{r}, \vec{R})$  ontwikkeld naar basisfuncties  $|\phi_k(\vec{r}, \vec{R})\rangle$ , die afhankelijk zijn van alle kern- en electronencoördinaten, behalve van de kernafstand  $R$ :

$$\Psi(\vec{r}, \vec{R}) = \sum_k F_k(R) \phi_k(\vec{r}, \vec{R}) \quad (2.5)$$

Hierin heeft  $k$  de rol van een collectief quantumgetal. Kiezen we voor een adiabatische representatie, waarin de elektronische delen  $|\zeta_k\rangle$  van de basisfuncties  $|\phi_k\rangle$  eigenfuncties zijn van de elektronen-hamiltoniaan  $H_{\text{mol}}$  (zie Vgl. (2.4), dan levert substitutie van Vgl. (2.5) in de Schrödingervergelijking Vgl. (2.3) een stelsel gekoppelde tweede-orde differentiaalvergelijkingen voor de radiële golf functies  $F_k(R)$  [MAR85]:

$$\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{d^2}{dr^2} F_k(R) + \{E - E_k(R)\} F_k(R) = \sum_{k'} V_{kk'}(R) F_{k'}(R) \quad (2.6)$$

$$V_{kk}(R) = -\frac{\hbar}{2\mu} \langle \phi_k | 2 \frac{\partial}{\partial r} + \frac{\partial^2}{\partial r^2} | \phi_k \rangle + \langle \phi_k | T_{\text{rot}} | \phi_k \rangle$$

In  $V_{kk}(R)$  herkennen we de radiële en rotationele koppelingen. Oplossing van het gekoppeld stelsel onder de geëigende asymptotische randvoorwaarden levert de zogenaamde verstrooiings- of S-matrix. Deze laatste staat rechtstreeks in verband met de gezochte werkzame doorsnedes voor het botsingsproces van Vgl. (1.1). Dit alles, alsmede het gekoppelde-kanalen programma waarin het zijn neerslag heeft gevonden, staat beschreven in [MAR84].

### Semiklassieke beschrijving

Een semiklassieke beschrijving van een botsingsprobleem houdt in, dat het algemene probleem van de gekoppelde elektronen-kernbeweging wordt gescheiden in afzonderlijke problemen: dat van de elektronenbeweging, die

quantummechanisch wordt behandeld, en dat van de kernbeweging, die klassiek wordt behandeld.

De kernen bewegen dus langs een traject  $\vec{R} = \vec{R}(t)$ , dat we voorlopig bekend veronderstellen. De tijdafhankelijke Schrödingervergelijking van de electronenbeweging wordt hiermee

$$i\hbar \frac{\delta}{\delta t} \Psi(\vec{r}; \vec{R}(t)) = H_{\text{mol}}(\vec{R}(t)) \Psi(\vec{r}; \vec{R}(t)) \quad (2.7)$$

waarbij de electronen-hamiltoniaan  $H_{\text{mol}}$  van de tijd  $t$  afhangt via  $\vec{R}(t)$  !

De electronengolf functie  $\Psi$  kan worden ontwikkeld naar een basis van adiabatische eigenfuncties  $\varphi_j(\vec{r}; \vec{R})$  van  $H_{\text{mol}}$  volgens:

$$\Psi(\vec{r}, t) = \sum_j f_j(t) \varphi_j(\vec{r}; \vec{R}(t)) \exp \left\{ \frac{i}{\hbar} \int^t E_j(\vec{R}(t')) dt' \right\} \quad (2.8)$$

met  $E_j(R)$  de adiabatische potentiaalcurves uit Vgl. (2.6). Dit leidt tot een stelsel gekoppelde eerste orde differentiaal-vergelijkingen voor de tijdafhankelijke ontwikkelingscoëfficiënten  $f_j(t)$ :

$$i\hbar \dot{f}_j = \sum_j f_j(t) \langle \varphi_j | i\hbar \frac{\partial}{\partial t} | \varphi_j \rangle \exp \left\{ \frac{i}{\hbar} \int^t (E_j - E_j) dt' \right\} \quad (2.9)$$

De operator  $-i\hbar \partial / \partial t$  zorgt voor koppelingen tussen adiabatische eigentoestanden. Maken we onderscheid tussen de radiële kernbeweging (met radiële snelheid  $\dot{R} = v_R$ ) en de rotationele kernbeweging (met hoeksnelheid  $\dot{\vartheta}$ , die rechtstreeks is gerelateerd aan het rotationeel impulsmoment  $|\vec{N}|^2 = N(N+1)\hbar^2$ ), dan kan deze tijdafgeleide worden geschreven als

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} &= -i\hbar \dot{R} \frac{\partial}{\partial R} - i\hbar \dot{\vartheta} \frac{\partial}{\partial \vartheta} \\ &= i\hbar v_R \frac{\partial}{\partial R} + \frac{\hbar^2 |\vec{N}|^2}{\mu R^2} \frac{J_{\perp}}{\hbar} \end{aligned} \quad (2.10)$$

waarin  $\vartheta$  de hoek is van de internucleaire as met de ruimte vaste as, en  $J_{\perp}$  de component van het totaal electronisch impulsmoment  $\vec{J}$  loodrecht op de internucleaire as. De operator  $J_{\perp}$  kunnen we via  $J_{\perp} = (J_+ + J_-)/2$  uitdrukken in de ladderoperatoren  $J_+$  en  $J_-$  die de component  $M_z, \hbar$  van het electronisch impulsmoment  $\vec{J}$  langs de internucleaire as  $z'$  verhogen respectievelijk verlagen. Ook hier herkennen we radiële en rotationele koppelingen.

In het vervolg beschrijven we nu, hoe via deze semiklassieke aanpak werkzame doorsnedes kunnen worden berekend.

## 2.2 Moleculaire Potentialen

Aan de adiabatische  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$  potentialen, die we als input voor onze semiklassieke berekeningen gebruiken, liggen de modelpotentialen van Hennecart [HEN82, HEN85] te grondslag. Voor het systeem  $\text{Ne}^{**}\text{-Ne}$  is door Boom [BOOS7] een recept gegeven, dat op het werk van Hennecart voortbordurt. De beschrijving van Hennecart is beperkt tot internucleaire afstanden  $R \leq 4.5 a_0$ ; in dit gebied vinden de voor ons interessante overgangen plaats. De hieronder te beschrijven modelpotentialen dienen natuurlijk ook als input voor de quantummechanische gekoppelde-kanalen berekeningen.

### 2.2.1 Systeem $\text{Ne}^{**}\text{-He}$

Hennecart [HEN82, HEN85] gaat uit van een drie-deeltjes interactie model, waarbij het systeem  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$  wordt geacht te bestaan uit een  $\text{Ne}^+\{(2p)^5\}$ -core, het  $\text{Ne}\{(3p)\}$ -valentie-electron en het grondtoestand  $\text{He}\{^1S_0\}$ -atoom. Dit houdt in, dat we de moleculaire Hamiltoniaan  $H_{\text{mol}}$  uit Vgl. (2.1) kunnen schrijven als

$$H_{\text{mol}}^{\text{Ne}^{**}\text{-He}} = H_{\text{at}}^{\text{Ne}^{**}} + H_{\text{at}}^{\text{He}} + (V_{\text{I}}^{\text{Ne}^+\text{-He}} + V_{\text{I}}^{\text{e}^-\text{-He}} + V_{\text{I}}^{\text{Ne}^+\text{-e}^-\text{-He}}) \quad (2.12)$$

Het zal duidelijk zijn, dat voor de elementaire wisselwerkingen de oriëntatie van het  $(2p)^{-1}$ -gat en het  $(3p)$ -valentie-electron van belang zijn. De ruimtelijke oriëntatie van de p-orbitaal ladingsverdelingen kan worden gekarakteriseerd met de projectie van  $|m_l|\hbar$  van het elektronisch baanimpulsmoment  $\vec{l}$  op de internucleaire as. We onderscheiden daarbij de de oriëntaties  $\sigma \equiv (|m_l|=0)$  en  $\pi \equiv (|m_l|=1)$ , die aanleiding geven tot verschillende potentialen. Het algemene karakter van deze wisselwerkingspotentialen kunnen we direct afleiden uit Fig. 2.1, waarin de verschillende ladingsverdelingen schetsmatig zijn weergegeven.

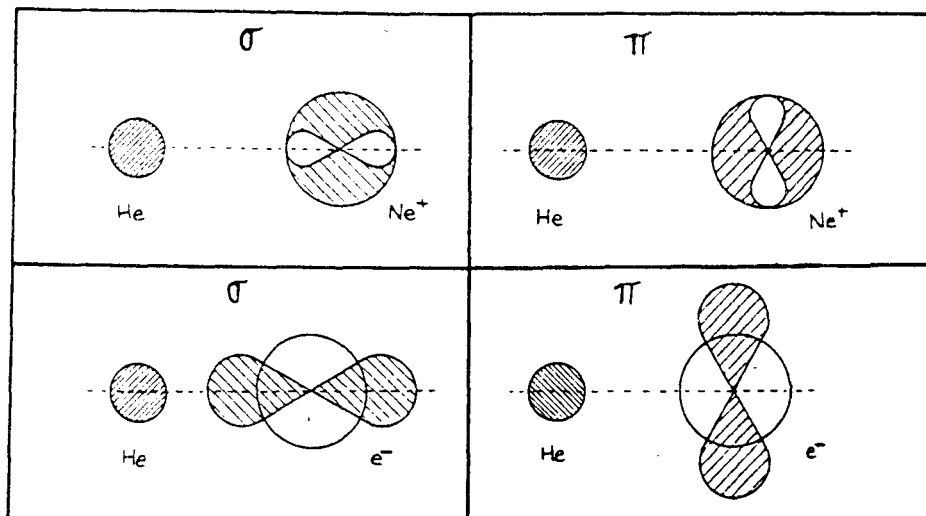


Fig.2.1. : De (3p) valentie-elektron (▨) en (2p) romp-gat (□) ladingsverdelingen, geassocieerd met  $\pi$ - en  $\sigma$ -toestanden van de  $e^-$ -He en  $Ne^+$ -He systemen. De  $\pi/\sigma$ -potentialen voor het valentie-elektron hebben respectievelijk een attractief/repulsief karakter. Voor het romp-gat is de situatie omgekeerd.

Deze Figuur laat de volgende algemene conclusies toe:

- De  $V_{\sigma}^e$  en  $V_{\pi}^e$  potentialen zullen vanwege de uitgestrekte ladingsverdelingen van het valentie-electron eerder repulsief worden dan de  $V_{\sigma}^c$  en  $V_{\pi}^c$  potentialen, welke laatste tot relatief kleine R-waarden een attractief karakter zullen behouden (lading-geïnduceerde-dipool wisselwerking).
- De  $V_{\sigma}^e$  potentiaal zal sneller repulsief worden dan de  $V_{\pi}^e$  potentiaal vanwege de oriëntatie van de electron-ladingsverdeling in de richting van de internucleaire as. Dit wijst al op mogelijke oriëntatie-effecten in onze experimenten.
- De  $V_{\pi}^c$  zal sneller repulsief worden dan de  $V_{\sigma}^c$  potentiaal.

Door Hennecart [HEN82] wordt allereerst het valentie-electron-probleem opgelost voor een nulde-orde effectieve moleculaire interactiepotentiaal



met, naast de  $e^-$ -He interactie en de drie-deeltjes  $Ne^+-e^-$ -He interactie, alleen het sferische deel van de atomaire  $Ne^+-e^-$  interactie. Resultaat hiervan zijn de  $V_\sigma^e(R)$  en  $V_\pi^e(R)$  potentialen voor de moleculaire toestanden  $|(3p)|m_l|=0\rangle$  respectievelijk  $|(3p)|m_l|=1\rangle$ .

De moleculaire  $(2p)^{-1}$  en  $(3p)$ -orbitalen blijken alleen in de buurt van het He-atoom significant af te wijken van de atomaire potentialen. Voor de voor ons vooral relevante grote internucleaire afstanden  $R \geq 4.5 a_0$  kunnen dan ook als volgende stap de atomaire Spin-Baan wisselwerking en de Coulomb-restwisselwerking worden berekend met eerste-orde storingsrekening op de atomaire  $|LSJM_J\rangle$ -basis, met L, S en J de quantumgetallen van respectievelijk het electronisch baan-, spin- en totaal impulsmoment. Via het formalisme van irreducibele tensor-operatoren [HEN82] kan als laatste ook de interactiematrix  $V_I^{Ne^{**}-He}$  op deze  $|LSJM_J\rangle$ -basis worden berekend. De matrixelementen hiervan zijn lineaire combinaties van  $V_\sigma^e(R)$  en  $V_\pi^e(R)$ .

Wat betreft de  $Ne^+$ -He interactie, gaat Hennecart, die zich immers beperkt tot het gebied  $R \geq 4.5 a_0$ , uit van een isotrope lading-geïnduceerde-dipool interactie.

Om de invloed van het binnengebied op verschillende overgangen te kunnen nagaan, zijn door ons de bovenbeschreven potentialen van Hennecart uitgebreid naar internucleaire afstanden  $R < 4.5 a_0$  [DRI85]. Evenals bij het valentie-electron leiden verschillende oriëntaties van de  $Ne^+$ -core ladingsverdeling in principe tot verschillende core-potentialen  $V_\sigma^c(R)$  en  $V_\pi^c(R)$ . Deze zijn af te leiden uit de spectroscopie van het  $Ne^+He$ -ion [DAB78]. De matrixelementen van de interactiematrix  $V_I^{Ne^+-He}$  zijn afgezien van een extra fasefactor  $(-1)^{L-L'}$ , analoog aan die van  $V_I^{e^-He}$ .

In de praktijk blijkt voor internucleaire afstanden  $R \geq 6 a_0$  nauwelijks van anisotropie sprake te zijn. We volstaan daarom voor  $R \geq 4.5 a_0$ , in navolging van Hennecart, met het in rekening brengen van een ion-geïnduceerde-dipool wisselwerking  $V_I^{Ne^+-He} = -C_4/R^4$ .

De  $(3p)$ -valentie-electron potentialen  $V_\sigma^e(R)$  en  $V_\pi^e(R)$  zijn semi-empirisch geëxtrapoleerd naar internucleaire afstanden  $R < 4.5 a_0$  [DRI85]. De  $V_\sigma^e$  potentiaal, die vanwege de naar het He-atoom gerichte oriëntatie van de electronladingsverdeling overal repulsief is, wordt voortgezet met een exponentiële repulsieve functie. De  $V_\pi^e$  potentiaal is tot  $R \approx 2.0 a_0$  voortgezet met een functie op basis van een electrostatisch lading-geïnduceerde-dipool model voor de bijdragen van de twee lobben van de

valentie-electron-ladingsverdeling aan de  $e^-$ -He interactie. Voor  $R < 2.0 a_0$  is een zeer sterk repulsieve functie toegevoegd.

Voor alle valentie-electron- en core-potentialen geldt, dat de verbinding tussen de potentialen in binnen- en buitengebied is gelegd met behulp van cubic-spline functies. In Fig. 2.2 zijn de gebruikte potentialen tesamen weergegeven.

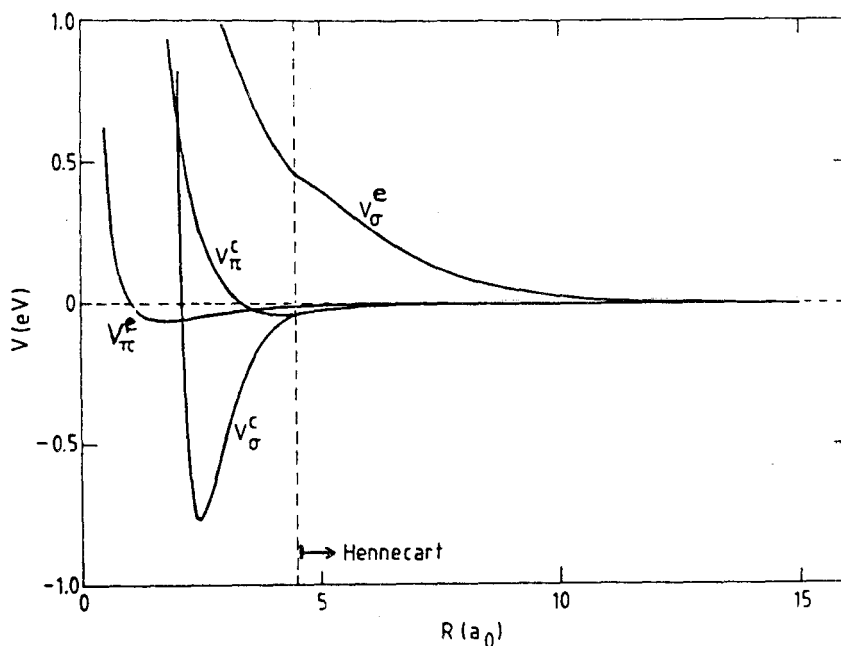


Fig. 2.2. : Potentialen van de  $e^-$ -He en  $Ne^+$ -He interactie, voor  $\pi^-$  en  $\sigma^-$  orientaties. De "knik" in de  $V_\sigma$ -potentiaal is terug te voeren op het afvlakken van de desbetreffende potentiaal van Hennecart nabij  $R = 4.5 a_0$ . De achtergrond hiervan is onbekend.

Gegeven de transformatie van de atomaire  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$ -eigentoestanden naar de  $|LSJM_J\rangle$ -basis [MAR84], kennen we nu de totale electronen-hamiltoniaan  $H_{mol}$  zowel in de  $|LSJM_J\rangle$ - als in de  $|\alpha JM_J\rangle$ -representatie. Na diagonalisatie volgen hieruit de adiabatische, moleculaire, potentiaalcurves  $E_k^\Omega(R)$  voor  $\Omega = 0, 1, 2, 3$ . Deze zijn te zien in Appendix A.

### 2.2.2 Systeem Ne<sup>\*\*</sup>-Ne

Het probleem voor het systeem Ne<sup>\*\*</sup>-Ne is in grote mate analoog aan het hiervoor beschreven Ne<sup>\*\*</sup>-He probleem. De situatie wordt gecompliceerd doordat we te maken hebben met ladinggelijke ( $^{20}\text{Ne}^{**}-^{20}\text{Ne}$ ,  $^{22}\text{Ne}^{**}-^{20}\text{Ne}$ ) of zelfs identieke ( $^{22}\text{Ne}^{**}-^{20}\text{Ne}$ ) kernen. De ladingssymmetrie heeft als consequentie inversiesymmetrie ten opzichte van het ladingsmiddelpunt. Omdat dit samenvalt met het massamiddelpunt (bij  $^{22}\text{Ne}^{**}-^{20}\text{Ne}$  in goede benadering) geeft dit aanleiding tot een quantumgetal  $\Pi_e$  voor de totale electronen-pariteit, te onderscheiden in een gerade ( $\Pi_e = +1$ ) en ungerade ( $\Pi_e = -1$ ) pariteit. De kerngelijkheid daarentegen is niet direct van invloed op de interactie zelf, maar levert een exchange-bijdrage aan de werkzame doorsnede [BOOS7]. Op de achtergronden hiervan zullen we in dit werk niet nader ingaan.

### 2.3. Semiklassieke theorie voor Radiële Koppeling

De "fysische" koppeling tussen adiabatische eigentoestanden door de operator  $T_{\text{rad}}$  van de relatieve kernbeweging (zie Vgl. (2.2)), die overgangen tussen Ne<sup>\*\*</sup>{ $\alpha$ }\_k- en Ne<sup>\*\*</sup>{ $\alpha$ }\_l-toestanden teweegbrengt, leent zich onder bepaalde condities voor een semiklassieke behandeling. Afhankelijk van het verloop van de adiabatische potentiaalcurves kan semiklassieke Landau-Zener dan wel Demkov theorie van toepassing zijn. Beide theorieën, die uitgaan van gemeenschappelijke basisprincipes, zullen we bespreken. Daarbij zal de nadruk komen te liggen op de benaderingen, die aan de semiklassieke beschrijving ten grondslag liggen, en op de grenzen van haar toepassingsgebied. Dit gebeurt met name om later de geidealiseerde semiklassieke beschrijving zo goed mogelijk met onze realistische potentialen in overeenstemming te kunnen brengen.

#### 2.3.1. Landau-Zener theorie

De Landau-Zener (LZ) theorie, of beter nog de Landau-Zener-Stückelberg (LZS) theorie gaat terug tot 1932 [LAN32, ZEN32, STU32]. In zijn meer

uitgebreide LZS-vorm brengt dit model interferentie-verschijnselen in rekening, wat het LZ-model niet doet. In de loop van de tijd is de LZS-theorie sterk uitgebreid, met name door inbegrip van tunnel-effecten, tot het lineaire model van Nikitin [NIK68] dat wij hier zullen hanteren. Weliswaar bestaan ook niet-lineaire modellen [NIK68], die een breder toepassingsgebied hebben, maar deze maken het moeilijker om een goed inzicht in de botsingsdynamica te behouden. Genoemde niet-lineaire modellen hebben overigens wel het voordeel, dat zij tevens de Demkov theorie omvatten. Een afzonderlijke beschrijving, zoals in [DEM63], blijft echter een goed alternatief.

### Avoided crossings

In paragraaf 2.1 zagen we reeds, dat in een semiklassieke beschrijving van het botsingsproces de operator  $-i\hbar v_R \partial/\partial R$  zorgt voor radiële niet-adiabatische koppelingen tussen adiabatische eigentoestanden. Deze koppeling van twee toestanden  $|\varphi_k\rangle$  en  $|\varphi_l\rangle$  zal met name sterk zijn wanneer de bijbehorende adiabatische potentiaalcurves  $E_k(R)$  en  $E_l(R)$  elkaar dicht naderen en een zogenaamde "avoided crossing" vertonen. Juist dan veranderen de adiabatische toestandsfuncties snel met de internucleaire afstand  $R$  [MAR84]. Dit wordt geïllustreerd door Fig. 2.3, die ter plekke van de avoided crossing een scherpe piek van het matrixelement  $\langle \varphi_k | \partial/\partial R | \varphi_l \rangle$  laat zien.

Vatten we  $\langle \varphi_k | \partial/\partial R | \varphi_l \rangle^{-1}$  op als een karakteristieke afstand  $\Delta R_C$  waarover de adiabatische golffuncties  $\varphi$  sterk veranderen, dan is in termen van tijdafhankelijke storingsrekening de grootheid

$$\tau_{kl} = \frac{\hbar v_R / \Delta R_C}{\Delta E_{kl}} \quad (2.13)$$

een maat voor de sterkte van de niet-adiabatische koppeling tussen twee toestanden, waarvan de adiabatische potentiaalcurves elkaar tot op een energieafstand  $\Delta E_{kl}$  naderen.

We beperken ons vanaf nu voor de duidelijkheid tot een twee-toestand systeem. Dit wordt natuurlijk ingegeven door het feit, dat avoided crossings per definitie een gelocaliseerd karakter hebben.

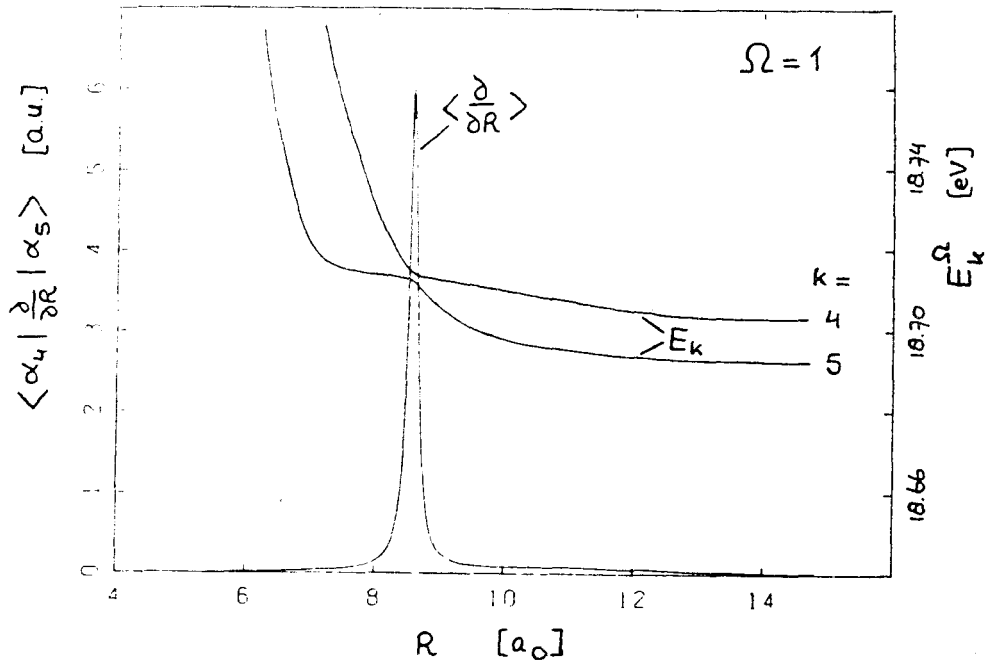


Fig.2.3. : Een avoided crossing van de adiabatische  $\{\alpha\}_4$  en  $\{\alpha\}_5$  potentiaalcurves voor  $\Omega = 1$  blijkt te corresponderen met een scherpe piek van het radiale  $\delta/\delta R$ -koppelmatrixelement. Dit heeft algemene geldigheid.

## Representaties

Bij sterke niet-adiabatische koppeling ligt het voor de hand om in de buurt van de avoided crossing het twee-toestand systeem te beschrijven in termen van zogenaamde diabatische toestandsfuncties  $|k\rangle$  en  $|l\rangle$  die slechts zwak van  $R$  afhangen. Asymptotisch moeten zij samenvallen met de adiabatische eigentoestanden  $|\varphi_k\rangle$  en  $|\varphi_l\rangle$  van de moleculaire electronenhamiltoniaan  $H_{\text{mol}}$ . De beide bases zijn via een orthonormale transformatie  $U$  in elkaar over te voeren:

$$\begin{bmatrix} |\varphi_k\rangle \\ |\varphi_l\rangle \end{bmatrix} = U \begin{bmatrix} |k\rangle \\ |l\rangle \end{bmatrix}, \quad U = \begin{bmatrix} \cos \gamma & \sin \gamma \\ \sin \gamma & \cos \gamma \end{bmatrix} \quad (2.14)$$

In de diabatische representatie is  $H_{\text{mol}}$  niet meer diagonaal. Naast de zogenaamde diabatische potentiaalcurves  $H_{kk}(r)$  en  $H_{ll}(R)$ , geschetst in

Fig. 2.3, zijn er nu ook koppelingsmatrix-elementen  $H_{kl}(R)$  en  $H_{lk}(R)$ . Asymptotisch moeten deze natuurlijk naar nul gaan. De diabatische potentiaalcurves  $H_{kk}(R)$  en  $H_{ll}(R)$  snijden elkaar in een punt  $R_C$  binnen het gebied van de avoided crossing, het zogenaamde "crossing-punt".

Als vereenvoudiging worden nu voor de diabatische matrixelementen van  $H_{mol}$  lineaire benaderingen ingevoerd als functie van  $R$ :

$$H_{ij}(R) = H_{ij}(R_C) + \frac{\partial}{\partial R} H_{ij}(R) \Big|_{R=R_C} \cdot (R-R_C) \quad (i, j = k, l) \quad (2.15)$$

Per definitie is dan  $H_{kk}(R_C) = H_{ll}(R_C) = H_C$ . Vanwege het feit dat de koppelingsmatrix-elementen  $H_{kl}(R)$  en  $H_{lk}(R)$  asymptotisch naar nul gaan, moet in de lineaire benadering gelden dat  $\frac{\partial}{\partial R} H_{kl}(R) \Big|_{R=R_C} = 0$  en  $\frac{\partial}{\partial R} H_{lk}(R) \Big|_{R=R_C} = 0$ , zodat  $H_{kl}(R) = H_{lk}(R) = H_{kl}(R_C) = H_{kl}$ . We vinden zo voor de matrixelementen van  $H_{mol}$  in de diabatische representatie:

$$\begin{aligned} H_{kk}(R) &= &= H_C - F_k(R-R_C) \\ H_{ll}(R) &= &= H_C - F_l(R-R_C) \\ H_{kl}(R) &= H_{lk}(R) &= H_{lk} \end{aligned} \quad (2.16)$$

met  $F_j = -\frac{\partial}{\partial R} H_{jj}(R) \Big|_{R=R_C}$  voor  $j = k, l$  de hellingen van de diabatische potentiaalcurves  $H_{kk}(R)$  en  $H_{ll}(R)$  ter plaatse van  $R_C$ .

De adiabatiese eigenwaarden  $E_k(R)$  en  $E_l(R)$  van  $H_{mol}$  (verkregen door diagonalisatie) zijn in termen van deze parameters

$$\begin{aligned} E_{k,l}(R) &= H_C \pm \frac{1}{2} \Delta H(R) \\ \Delta H(R) &= \sqrt{\{(F_k - F_l)(R-R_C)\}^2 + 4H_{lk}^2} \end{aligned} \quad (2.17)$$

Dit houdt in, dat we de crossing-radius  $R_C$  in de praktijk kunnen bepalen als het punt van dichtste nadering van de adiabatiese potentiaalcurves  $E_k(R)$  en  $E_l(R)$ . Het koppelingsmatrix-element  $H_{kl}$  is gelijk aan  $H_{kl} = \{E_k(R_C) - E_l(R_C)\}/2$ , terwijl voor de crossing-energie  $H_C$  geldt  $H_C = \{E_k(R_C) + E_l(R_C)\}/2$ . Dit alles wordt verduidelijkt door Fig. 2.4.

Voor de menghoek  $\gamma(R)$  uit Vgl. (2.14) kunnen we afleiden dat

$$\gamma(R) = \frac{1}{2} \arctan \frac{2H_{lk}}{(F_k - F_l)(R-R_C)} \quad (2.18)$$

met een maximale waarde  $\gamma = \pi/2$  voor zeer kleine afstanden  $R$ . Dus ook voor kleine internucleaire afstanden is er weer sprake van adiabatische toestanden. De niet-adiabatische koppelingssterkte  $\tau_{kl}$  van Vgl. (2.13) wordt nu gegeven door :

$$\tau_{kl} = \frac{\hbar v_R (F_k - F_l)}{H_{kl}^2} \quad (2.19)$$

Het is  $\tau_{kl}$  die bepaalt welke van de in principe equivalente representaties de voorkeur geniet. Bij zwakke niet-adiabatische koppelingen ( $\tau_{kl}$  klein) is dat natuurlijk de adiabatische representatie, in het andere geval ( $\tau_{kl}$  groot) de diabatische representatie.

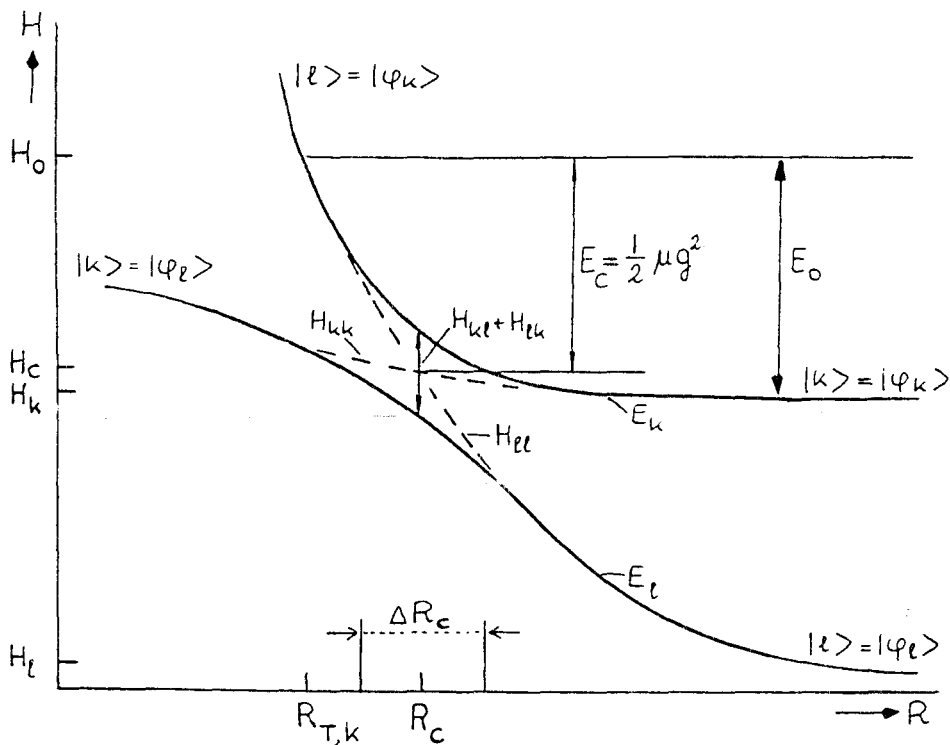


Fig.2.4. : Schematisch beeld van een avoided crossing waarop de Landau-Zener theorie van toepassing is. Zie de tekst voor uitleg.

## Overgangswaarschijnlijkheid

Het is ons uiteindelijk te doen om de waarschijnlijkheid  $P_{kl}$  van een inelastische overgang tussen twee asymptotische toestanden  $|\varphi_k\rangle \equiv |k\rangle$  en  $|\varphi_l\rangle \equiv |l\rangle$ . Deze overgangswaarschijnlijkheid moet worden bepaald door het stelsel differentiaalvergelijkingen van Vgl. (2.8), dan wel het diabatisch equivalent daarvan, op te lossen. Daarvoor is het van essentieel belang de deeltjesbaan  $\xi = \xi(t)$  te kennen, met

$$\xi(t) = R(t) - R_C \quad (2.20)$$

Opgemerkt moet worden, dat een botsing tussen twee deeltjes in het algemeen twee passages van de avoided crossing omvat, namelijk tijdens de inkomende ( $\partial\xi(t)/\partial t < 0$ ) en tijdens de uitgaande ( $\partial\xi(t)/\partial t > 0$ ) beweging.

Het zal op grond van Vgl. (2.19) duidelijk zijn dat de overgangswaarschijnlijkheid  $P_{kl}$  sterk afhankelijk is van de radiële component  $v_R$  van de relatieve snelheid van de botsingspartners. Voor lage snelheden  $v_R$  zal de niet-adiabatische koppeling klein zijn (de electronengolf functies kunnen zich continu aanpassen aan de kernbeweging) en zal de crossing tweemaal adiabatisch doorlopen worden ( $P_{kl} = 0$ ). Voor hoge snelheden is de koppeling van adiabatische toestanden juist zeer effectief, zodat de crossing tweemaal diabatisch wordt gepasseerd ( $P_{kl} = 0$ ). In beide limietgevallen zijn de begin- en eindtoestand gelijk en vindt elastische verstrooiing plaats. Inelastische verstrooiing ( $P_{kl} > 0$ ) treedt daarom op in een beperkt snelheidsgebied waarvoor  $\tau_{kl} \approx 1$ .

## Landau-Zener theorie

De oorspronkelijke semiklassieke aanpak van dit probleem door Landau en Zener [LAN32, ZEN32] berustte op de aanname van een eenparige beweging in de buurt van de crossing-radius  $R_C$ :

$$\xi(t) = v_R \cdot t \quad (2.21)$$

De constante radiële snelheid  $v_R$  wordt berekend ten opzichte van de crossing-energie  $H_C$ . Deze aanname is redelijk wanneer de crossing-radius  $R_C$  ver van het klassieke omkeerpunt  $R_T$  ligt ( $R_C \gg R_T$ ). Dan mag ook



interferentie tussen de inkomende en uitgaande beweging worden verwaarloosd. In deze benadering zijn de deeltjesbanen in het gebied van de avoided crossing hetzelfde voor de inkomende en uitgaande beweging.

Wanneer we nu  $p_{kl}$  definiëren als de kans, dat bij een enkele passage van de avoided crossing van adiabatische potentiaalcurve wordt gewisseld, dan zal alleen een netto overgang van  $|\varphi_k\rangle$  naar  $|\varphi_l\rangle$  optreden, indien tijdens de inkomende en uitgaande beweging éénmaal wel en éénmaal niet van adiabatische potentiaalcurve wordt gewisseld. In Fig. 2.5 wordt dit geïllustreerd.

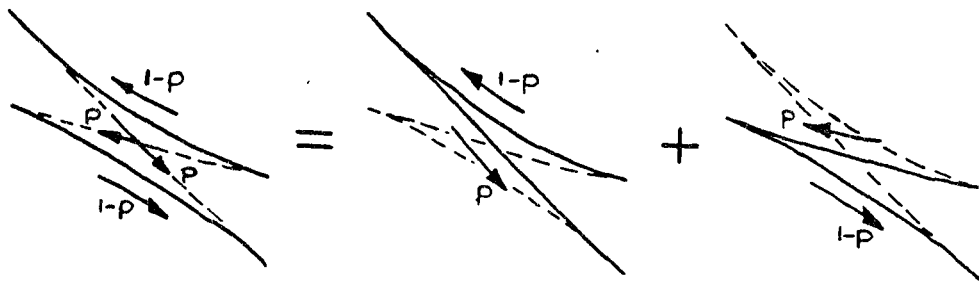


Fig.2.5. : Voor een netto overgang tussen twee adiabatische potentiaalcurves is het nodig dat, hetzij tijdens de inkomende, hetzij tijdens de uitgaande beweging, van curve wordt gewisseld, maar niet tijdens beide!

Onder de eerder genoemde voorwaarden is een exacte oplossing van de (a)diabatische differentiaalvergelijkingen Vgl. (2.8) mogelijk. Dit levert de bekende Landau-Zener formule voor de overgangswaarschijnlijkheid  $P_{kl}$ :

$$P_{lk} = 2p_{lk}(1-p_{lk}) \quad p_{lk} = \exp\left(-\frac{v_{lk}}{v_R}\right) \quad (2.22)$$

Hierbij definiëren we de voor elke avoided crossing karakteristieke referentiesnelheid  $v_{kl}$  als

$$v_{lk} \equiv \frac{2\pi H_{lk}^2}{\hbar(F_k - F_l)} \quad (2.23)$$

In het verloop van de overgangswaarschijnlijkheid  $P_{kl}$  als functie van de geschaalde radiële snelheid  $v_R/v_{kl}$  in Fig. 2.6 herkennen we de reeds besproken snelheidsgebieden voor elastische ( $v_R \ll v_{kl}$ ) en inelastische ( $v_R \simeq v_{kl}$ ) verstrooiing.

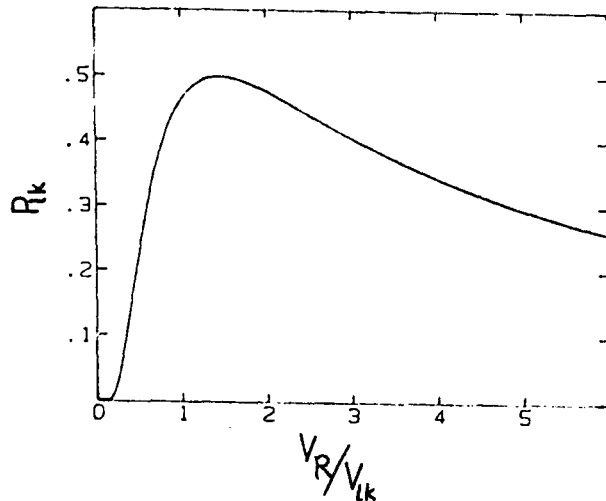


Fig.2.6. : De overgangswaarschijnlijkheid  $p_{kl}$  volgens de Landau-Zener theorie (Vgl.(2.24)), als functie van de geschaalde radiale snelheid  $v_R/v_{kl}$ .

Naar nu zal blijken, vormt de overzichtelijke Landau-Zener formule een limietgeval van de meer algemene oplossing, zoals die door Nikitin werd bepaald [NIK68].

### Lineaire model van Nikitin

Wanneer het klassieke omkeerpunt  $R_T$  dicht bij de crossing-radius  $R_C$  ligt, kan de invloed daarvan verdisconteerd worden door een eenparig vertraagde cq versnelde klassieke baanbeweging onder invloed van een effectieve kracht  $F$  te introduceren:

$$\xi(t) = v_R t + \frac{1}{2} \frac{F}{\mu} t^2 \quad (2.24)$$

In principe zouden we twee verschillende banen onder invloed van de krachten  $F_k$  en  $F_l$  moeten onderscheiden. Nikitin et al. [BYK65] toonden echter aan, dat door de keuze van  $F = \sqrt{|F_k F_l|}$  en een baanbeweging volgens Vgl. (2.21) een beschrijving ontstaat, die equivalent is aan de quantummechanische beschrijving.

Zonder op de feitelijke oplossing van bovenstaand probleem te willen ingaan, besluiten we ons overzicht van de één-dimensionale lineaire

semiklassieke theorie voor de volledigheid met een opsomming van de einduitdrukkingen voor de overgangswaarschijnlijkheden  $P_{kl}$ , die volgen uit deze aanpak. We introduceren daarvoor de volgende dimensieloze parameters:

$$\epsilon \equiv \frac{E_C}{2H_{lk}} \frac{(F_k - F_l)}{|F_k F_l|^{1/2}} \quad (2.25)$$

$$b \equiv 4 H_{lk} \left\{ \frac{\mu H_{lk}}{\hbar^2 |F_k F_l|^{1/2} (F_k - F_l)} \right\}^{1/2}$$

De parameter  $\epsilon$  specificeert de kinetische energie van de deeltjes in het crossing-punt  $R_C$  en is een maat voor de verhouding van de effectieve breedte van het gebied van de avoided crossing en de afstand van het klassieke omkeerpunt  $R_T$  tot de crossing. De parameter  $b$  specificeert het koppelingsmatrix-element  $H_{kl}$  en is een maat voor de niet-adiabatische koppelingssterkte  $\tau_{kl}$ .

Bij sterke niet-adiabatische koppelingen,  $b \ll 1$ , krijgen we

$$P_{lk}(\epsilon, b) = \pi^2 b^{4/3} A_i(-\epsilon b^{2/3}) \quad (2.26)$$

waarin  $A_i$  de bekende Airy-functie is [ABR74]. Asymptotisch laat deze uitdrukking zich schrijven als:

$$P_{lk}(\epsilon, b) = \begin{cases} 4 \left( \frac{V_{lk}}{V_R} \right) \sin^2 \left\{ \frac{2}{3} b \epsilon^{3/2} + \frac{\pi}{4} \right\}, & b^{2/3} \epsilon \gg 1 \\ \frac{V_{lk}}{V_R} \exp \left\{ -\frac{4}{3} b |\epsilon|^{3/2} \right\}, & b^{2/3} \epsilon \ll -1 \end{cases} \quad (2.27)$$

In het geval dat  $\epsilon > 0$  ( $E_C > 0$ ) ontdekken we hierin het effect van de interferentie tussen inkomende en uitgaande beweging ten gevolge van de op het traject  $R < R_C$  opgelopen faseverschillen. Voor  $\epsilon < 0$  ( $E_C < 0$ ) neemt de overgangswaarschijnlijkheid exponentieel af, hetgeen correspondeert met het effect van "tunneling" door het klassiek verboden gebied.

Zwakke niet-adiabatische koppeling, waarvoor  $b \gg 1$ , leidt in het geval dat  $|\epsilon| > 0$  tot

$$P_{lk}(b\epsilon) = 2\pi \delta \frac{\sin^2 \pi \delta}{\pi^2} \pi^2(\delta) \delta^{-2\delta} e^{-2\delta} e^{-b\Delta(\epsilon)} \quad (2.28)$$

$$\delta = b / 8\sqrt{|\epsilon|} = \frac{1}{2\pi} \frac{v_{lk}}{v_R}$$

$$b\Delta(\epsilon) = \begin{cases} \frac{b\pi}{4|\epsilon|^{1/2}} (1 - 3/32|\epsilon|^{-2} + \dots) & \epsilon \gg 1 \\ b (1.22 - 0.59 \epsilon) & |\epsilon| \ll 1 \\ 4/3 b |\epsilon|^{3/2} & \epsilon \ll -1 \end{cases} \quad (2.29)$$

Extrapolatie naar het gebied  $b \gg 1$ ,  $|\epsilon| < 1$  wordt mogelijk, indien we in deze formule de interferentieverschijnselen uitmiddelen. Dan zien we een meer doorzichtige uitdrukking voor  $P_{kl}$  verschijnen:

$$P_{lk}(b\epsilon) = 2 e^{-b\Delta(\epsilon)} (1 - e^{-b\Delta(\epsilon)}) \quad (2.30)$$

We merken op, dat deze uitdrukking direct overgaat in de bekende Landau-Zener formule, wanneer het omkeerpunt  $R_T$  ver naar binnen gelegen is ten opzichte van het crossing-punt ( $\epsilon \gg 1$ ) !

## Resumé

We hebben met dit alles een techniek gevonden om de waarschijnlijkheid  $P_{kl}$  van het optreden van een botsinggeïnduceerde overgang tussen twee adiabatische eigentoestanden  $|\varphi_k\rangle$  en  $|\varphi_l\rangle$  te bepalen. Algemene voorwaarden zijn alleen, dat de diabatische potentiaalcurves elkaar in het gebied van de avoided crossing snijden, en dat de hellingen  $F_k$  en  $F_l$  een gelijk teken te hebben.

In Fig. 2.7 zijn de verschillende toepassingsgebieden, onderscheiden naar de parameters  $b$  en  $\epsilon$ , weergegeven met daarbij vermeld de geldende uitdrukking voor  $P_{kl}(\epsilon, b)$ . Alleen in het gebied  $|\epsilon| \approx 1$ ,  $|b| \approx 1$  valt geen analytische uitdrukking voor de overgangswaarschijnlijkheid  $P_{kl}$  te geven en is een numerieke oplossing van het probleem vereist. Nadere uitwerkingen van genoemde technieken in de literatuur [NIK68, THO71, DEL72] wijzen er echter op, dat de toepassingsgebieden in het algemeen veel ruimer zijn dan de gegeven, kennelijk erg strenge, selectiecriteria doen geloven.

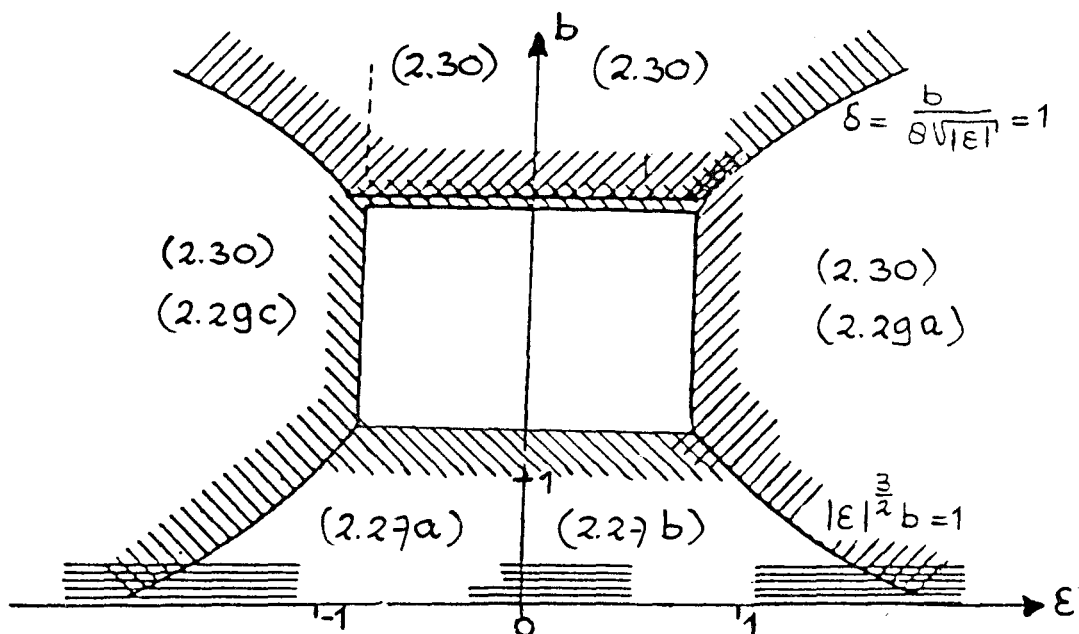


Fig.2.7. : Toepassingsgebieden van de in de tekst gegeven en aan het lineaire model van Nikitin ontleende uitdrukkingen voor de semiklassieke overgangswaarschijnlijkheid  $P_{kl}$ . In het gearceerde overgangsgebied kunnen continuïteitsproblemen

### 2.3.2. Demkov theorie

Waar in de semiklassieke Landau-Zener beschrijving van botsing-geïnduceerde overgangen, niet-adiabatische koppelingen tussen eigen-toestanden  $|\varphi_k\rangle$  en  $|\varphi_l\rangle$ , ontstaan doordat de betreffende adiabatische potentiaalcurven elkaar "aantrekken", beschrijft de Demkov-theorie het effect van lang evenwijdig lopende en uiteindelijk "afstotende" potentiaalcurven. Zie voor een verduidelijking hiervan Fig. 2.8.

In dit geval mengen de beide adiabatische toestanden  $|\varphi_k\rangle$  en  $|\varphi_l\rangle$  tijdens de botsing steeds verder op, waarbij de menghoek  $\gamma$  nu loopt van  $\gamma = 0$  voor  $R \rightarrow \infty$  tot  $\gamma = \pi/4$  voor  $R \rightarrow 0$ . Voor kleine internucleaire afstanden  $R$  treedt dus, in tegenstelling tot bij de Landau-Zener theorie, geen ontmenging op. Het interactiegebied is daarom zeer uitgestrekt, zodat definitie van een crossing-punt onmogelijk is. Demkov et al. [DEM63] berekende volgens het in paragraaf 2.3.1 geschetste principe de overgangs-

waarschijnlijkheid  $P_{kl}$ . We zullen hier op dit model niet verder ingaan, daar het verloop van de potentiaalcurven voor onze praktische situatie geen aanleiding geven tot een dergelijke beschrijving. Van de Demkov-theorie maakten we alleen voor de volledigheid melding.

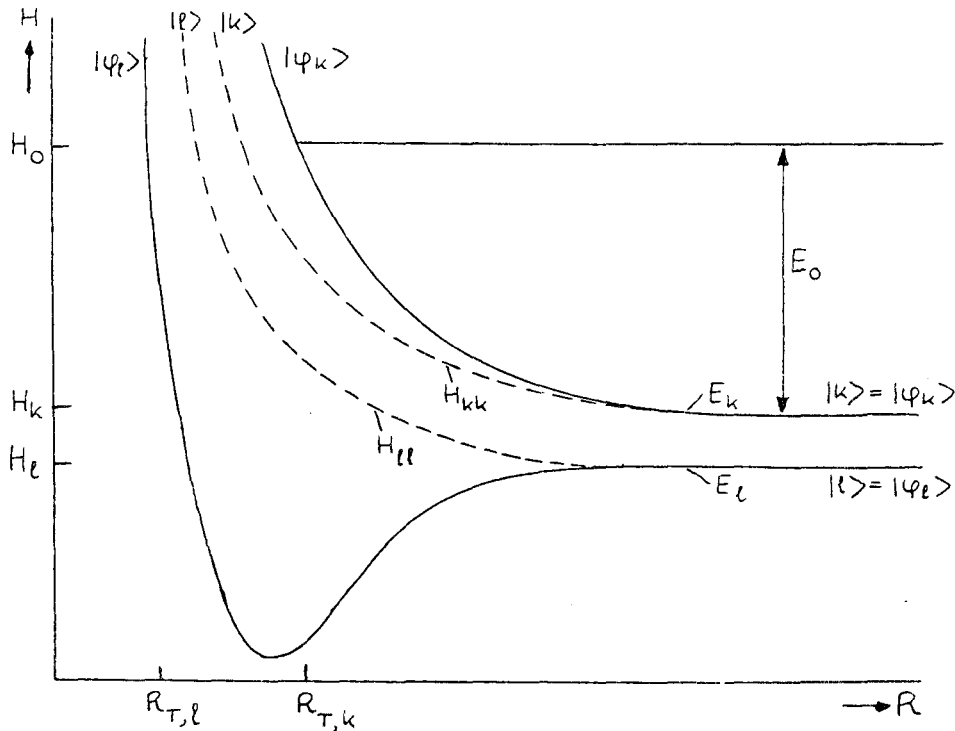


Fig.2.8. : Gedrag van adiabatische potentiaalcurves waarop Demkov-theorie van toepassing is.

### 2.3.3. Toepassing

In het voorgaande hebben we steeds gesproken over adiabatische en diabatische potentiaalcurves. Wanneer deze bekend zijn, kunnen we het optreden van botsinggeïnduceerde overgangen op semiklassieke wijze verklaren uit de aanwezigheid van avoided crossings tussen de betreffende adiabatische potentiaalcurven.

De adiabatische potentiaalcurven  $E_k^{\Omega}(R)$  en  $E_l^{\Omega}(R)$  kunnen we voor de systemen  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$  en  $\text{Ne}^{**}\text{-Ne}$  volgens paragraaf 2.2 direct afleiden uit de modelpotentialen. De keuze van de diabatische potentiaalcurven  $H_{kk}(R)$  en  $H_{ll}(R)$  daarentegen blijkt niet eenduidig te zijn [VRES6]. We beperken ons

daarom tot een schatting van de diabatische potentiaalcurves, zodanig dat ze in het gebied van de avoided crossing een vloeiende verbinding tussen de betreffende bekende adiabatiese potentiaalcurven vormen en elkaar snijden in het crossing-punt (zie Fig. 2.2). Op deze manier hebben we een beperkte vrijheid in de keuze van de vrije parameters in het semiklassieke model, namelijk het koppelingsmatrix-element  $H_{kl}$  en de hellingen  $F_k$  en  $F_l$  van de diabatische potentiaalcurven bij de crossing-radius  $R_C$ .

### Centrifugaal-potentiaal

Ten gevolge van de rotatie van de internucleaire as gedurende de botsing worden de adiabatiese potentiaalcurven (eigenwaarden van de moleculaire Hamiltoniaan  $H_{\text{mol}}$  voor stilstaande kernen) gemodificeerd met de centrifugaal-potentiaal  $V^{\text{cf}}(R) = N(N+1)\hbar^2/2\mu R^2$ , met  $N$  het quantumgetal van het rotationeel impulsmoment  $\vec{N}$ . Deze centrifugaal-potentiaal beïnvloedt de voorgaande beschrijving op een drietal punten :

- De radiële snelheid  $v_R = \sqrt{2E_R/\mu}$  wordt kleiner volgens:

$$\frac{1}{2} \mu v_R^2 = E_R = E_0 - H_c - \frac{N(N+1)\hbar^2}{2\mu R_C^2} \quad (2.34)$$

- De klassieke omkeerpunten  $R_{T,k}$  en  $R_{T,l}$ , voor deeltjes die bewegen langs de adiabatiese potentiaalcurves  $E_k(R)$  en  $E_l(R)$ , schuiven dichter naar de crossing-radius  $R_C$  toe volgens:

$$E_0 - E_j(R_{T,j}) - \frac{N(N+1)\hbar^2}{2\mu R_{T,j}^2} = 0 \quad (j=k,l) \quad (2.35)$$

- De effectieve hellingen  $F_k$  en  $F_l$  van de diabatische potentiaalcurven  $H_{kk}(R)$  en  $H_{ll}(R)$  worden groter, volgens :

$$F'_{k,l} = F_{k,l} - \frac{\partial}{\partial R} \frac{N(N+1)\hbar^2}{2\mu R^2} \Big|_{R=R_C} = F_{k,l} + \frac{N(N+1)\hbar^2}{\mu R_C^3} \quad (2.36)$$

Opgemerkt kan worden, dat het crossing-punt slechts tot een zekere maximale  $N$ -waarde klassiek kan worden bereikt. Voor grotere waarden van  $N$  zijn alleen overgangen mogelijk via het quantummechanische tunnel-effect.

## Correspondentierelatie

In de praktijk willen we de dynamica van het botsingsproces begrijpen door bijdragen aan de botsingsdoorsnede  $Q_{l \leftarrow k}$  voor een overgang tussen  $N e^{**} \{\alpha\}_k$ -en  $N e^{**} \{\alpha\}_l$ -toestanden te bepalen voor verschillende botsingsparameters  $b$ . Op grond van de correspondentierelatie [BEY77]

$$b = \frac{|\vec{N}|}{\mu g_k} \approx \frac{(N+1/2)\hbar}{\mu g_k} = (N+1/2)\lambda_k \quad (2.37)$$

komt elke botsingsparameter  $b$  overeen met een zeker rotationeel impulsmoment quantumgetal  $N$ . De asymptotische relatieve snelheid  $g_k$  van de twee botsingspartners bepaalt de gereduceerde deBroglie-golflengte  $\lambda_k$ .

### 2.4. Rotationale koppeling

In de voorgaande paragraaf is beschreven hoe de semiklassieke berekening van de overgangswaarschijnlijkheid  $P_{k \leftarrow l}^{\Omega_k}(b)$  voor een overgang tussen toestanden  $|\alpha_k J_k \Omega\rangle$  en  $|\alpha_l J_l \Omega\rangle$  als gevolg van radiële koppeling bij een avoided crossing in zijn werk gaat.

De overgangswaarschijnlijkheden  $P_{k \leftarrow l}^{\Omega_k}(b)$  zijn in het algemeen ongelijk voor verschillende  $\Omega$ -waarden. Dit impliceert dat het voor de berekening van gepolariseerde botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{|M_k|}$  van essentieel belang is om bij de avoided crossing de verdelingen  $g_k^{M_k \Omega_k}$  over  $|\alpha_k J_k \Omega_k = |M_k|\rangle$  toestanden te kennen voor een zuivere  $|\alpha_k J_k M_k\rangle$ -begintoestand. De indices  $z$  en  $z'$  duiden hierbij aan dat het de componenten  $M_k \hbar$  van het totaal impulsmoment  $\vec{J}$  langs de asymptotische respectievelijk lichaamsvaste internucleaire as betreft.

Het ontstaan van de verdelingen  $g_k^{M_k \Omega_k}$  is een kwestie van rotationele koppelingen tussen toestanden  $|\alpha_k J_k \Omega\rangle$  en  $|\alpha_k J_k \Omega' = \Omega \pm 1\rangle$  door de operator  $T_{\text{rot}}$  voor de rotationele kernbeweging uit Vgl. (2.2). Deze rotationele koppeling moet echter wedijveren met de  $\Omega$ -behoudende "fysische" koppeling die aanleiding geeft tot de adiabatische potentiaalcurves  $E_k^{\Omega}(R)$ .

In ieder geval is kennis omtrent de klassieke deeltjesbanen als functie van de botsingsparameter  $b$  vereist om überhaupt de stand van de



internucleaire as op ieder punt, en in het bijzonder bij de crossingradius, te kunnen bepalen.

### 2.4.1. Rotatiekoppeling

Bij een vaste stand van het elektronisch impulsmoment  $\vec{J}$  in de ruimte brengt een rotatie van de internucleaire as gedurende de botsing met zich mee, dat een  $|\alpha_k J_k M_k\rangle$ -begintoestand getransformeerd wordt tot een zekere verdeling  $g_k^{M_k \Omega_k}$  over  $|\alpha_k J_k M_k\rangle_z$  toestanden. In Fig. (2.9) wordt dit mathematisch effect van  $\Omega$ -menging, genaamd rotatiekoppeling, geïllustreerd.

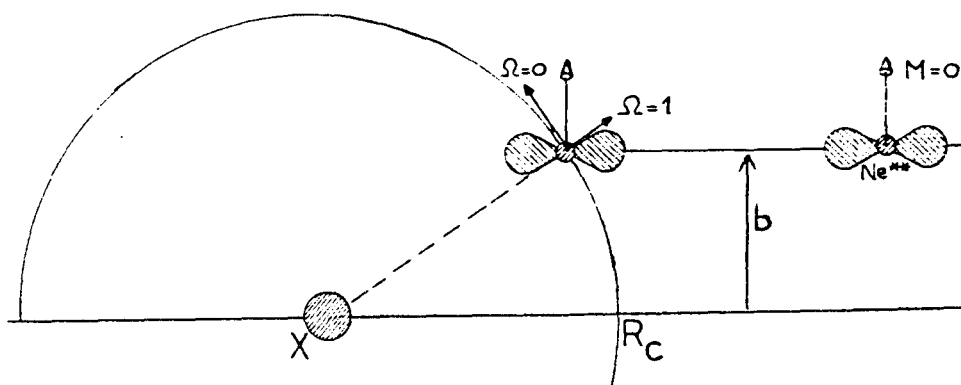


Fig.2.9. : Het zuiver "mathematisch" effect van  $\Omega$ -menging als gevolg van rotatie-koppeling.

De verdeling  $g_k^{M_k \Omega_k}$  kan berekend worden met behulp van het rotatiematrix-formalisme. Zij  $\gamma$  de momentane hoek tussen de asymptotische relatieve snelheid en de internucleaire as, dan geldt bij geschikte keuze voor de oriëntatie van de andere assen loodrecht op de quantisatie-as :

$$g_k^{M_k \Omega_k} = \begin{cases} d_{M_k \Omega_k}^{(J_k)}(\gamma)^2 + d_{M_k -\Omega_k}^{(J_k)}(\gamma)^2 & \Omega_k \neq 0 \\ d_{M_k 0}^{(J_k)}(\gamma)^2 & \Omega_k = 0 \end{cases} \quad (2.38)$$

met  $d$  de bekende rotatiematrices of gereduceerde Wigner-D functies van de orde  $J_k$  [MESS1].

### 2.4.2. "Locking"

Het is niet realistisch te veronderstellen dat langs de gehele deeltjesbaan het elektronisch impulsmoment  $\vec{J}$  zijn ruimtevaste stand behoudt; met andere woorden: er zal niet altijd sprake zijn van zuivere rotatiekoppeling.

De waarde van  $\Omega$  kan tijdens de botsing namelijk alleen veranderen door een overgang van een  $|\alpha_k J_k \Omega_k\rangle$  naar een  $|\alpha_k J_k \Omega'_k = \Omega_k \pm 1\rangle$ -toestand als gevolg van rotatiekoppeling. Dit gaat echter noodgedwongen gepaard met een energieverandering  $\Delta E_k^{\Omega\Omega'}(R) = E_k^{\Omega}(R) - E_k^{\Omega'}(R)$ , met  $E_k^{\Omega}(R)$  een adiabatische potentialcurve. Deze energieverandering moet voortkomen uit een verandering van  $\Delta E_{\text{rot}}$  van de rotationele energie  $E_{\text{rot}} = N(N+1)\hbar^2/2\mu R^2$  van de kernbeweging. Het behoud van het totaal impulsmoment  $\vec{P} = \vec{N} + \vec{J}$  gedurende de botsing stelt echter grenzen aan deze verandering van de rotationele energie ( $P-J \leq N \leq P+J$ ). Anders gezegd, moeten we de matrixelementen  $(T_{\text{rot}})_{\Omega\Omega'} = \Delta E_{\text{rot}} = N\hbar^2/\mu R^2$  van de rotatie-koppelings-operator  $T_{\text{rot}}$  uit Vgl. (2.11) vergelijken met de omega-opsplitsing  $\Delta E_k^{\Omega\Omega'}(R)$ . Quantummechanisch vinden we voor  $(T_{\text{rot}})_{\Omega\Omega'}$  uit Vgl. (2.7) eenzelfde uitdrukking als semiklassiek [VRE86]. Ter illustratie moge Fig. 2.10 dienen.

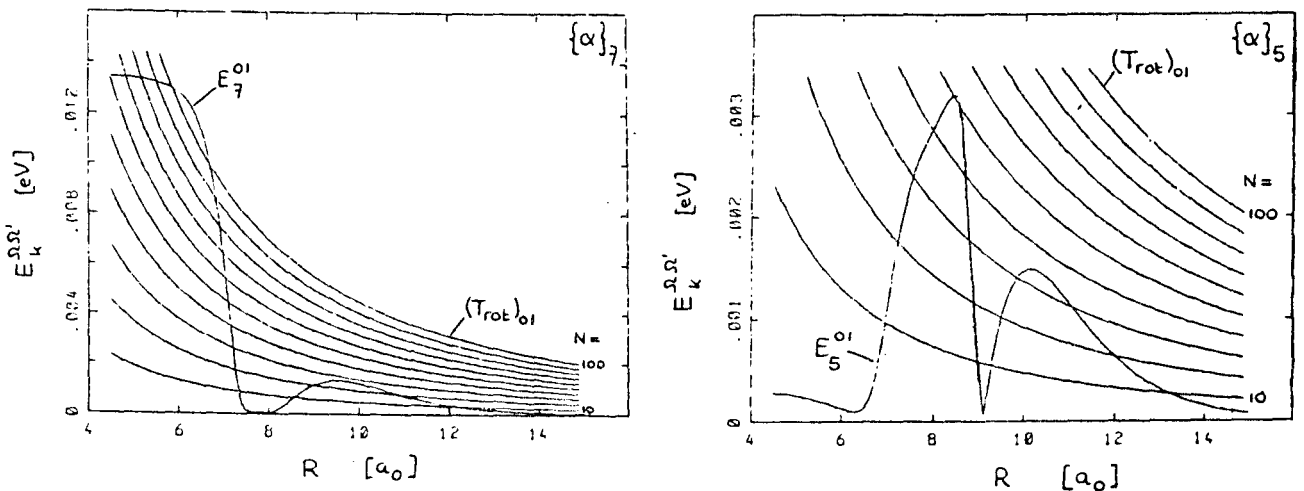


Fig.2.10. : Rotatie-koppelingssterkte versus  $\Omega$ -opsplitsing voor het systeem  $\text{Ne}^{xx}\text{-He}$  bij  $E = 100$  meV.

We onderscheiden twee limietgevallen. Indien de  $\Omega$ -opsplitsing van de adiabatische potentiaalcurves  $\Delta E_r^{\Omega\Omega'}(R)$  veel groter is dan de rotatiekoppelingssterkte  $(T_{\text{rot}})_{\Omega\Omega'}$ ,  $\Delta E_r^{\Omega\Omega'}(R) \gg (T_{\text{rot}})_{\Omega\Omega'}$ , dan blijft de oriëntatie  $\Omega$  ten alle tijde behouden. We spreken in dit geval van "locking" van het elektronisch impulsmoment  $\vec{J}$  aan de internucleaire as. Bij een zeer kleine  $\Omega$ -opsplitsing daarentegen,  $\Delta E_r^{\Omega\Omega'}(R) \ll (T_{\text{rot}})_{\Omega\Omega'}$ , zal van "locking" geen sprake zijn en hebben we te maken met de zuivere rotatiekoppeling van de voorgaande paragraaf.

Het overgangsgedebied tussen rotatiekoppeling en "locking" is problematisch en hier zal alleen een volledige beschrijving (als in de quantummechanica) voldoen. In de semiklassieke beschrijving is het een gebruikelijke benadering [HER85] om "locking" te laten ingaan bij een vaste zogenaamde locking-radius  $R_L$ . De waarden voor  $R_L$ , die in principe verschillend zijn per toestand  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$ , leiden we af uit de adiabatische potentiaalcurves (zie Fig. 2.10.).

Over het gedeelte van de klassieke deeltjesbaan waar "locking" plaatsvindt, verandert de bezettingsgraad verdeling  $g_r^{M_r\Omega_k}$  over zuivere  $|\alpha_k J_k \Omega_k\rangle$  toestanden niet omdat de oriëntatie van  $\vec{J}$  ten opzichte van de internucleaire as niet meer verandert. In Fig. 2.11. wordt dit schematisch weergegeven.

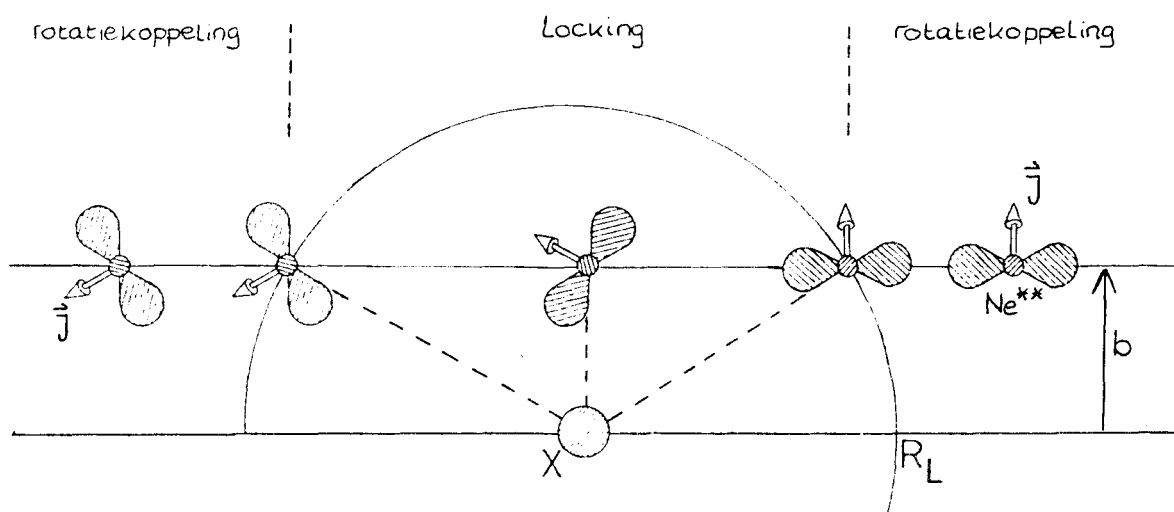


Fig.2.11. : Het effect van  $\Omega$ -behoud door "locking".

### 2.4.3. Klassieke deeltjesbanen

Uit het voorgaande zal duidelijk zijn dat het effect van rotatiekoppeling volledig afhangt van de deeltjesbaan die tijdens de botsing wordt gevolgd. In een allereenvoudigst model beschreven we het  $Ne^{**}-X$  botsingsproces tot op heden als een verstrooiing aan een harde wand, gelegen bij  $R=R_C$ . In de literatuur is de iets minder elementaire rechtebaan benadering heel gebruikelijk. Volgens het huidige model berekenen wij nu rechte deeltjesbanen voor harde-bol verstrooiing, waarbij de harde-bol straal gelegen is bij het klassieke omkeerpunt  $R_T$ . Doordat het klassieke omkeerpunt verschuift als functie van de botsingsparameter  $b$  (vergelijk Vgl. (2.35)) levert dit een redelijk goede overeenstemming met de realiteit. In de toekomst staat een klassieke baanberekening met de adiabatische potentialen op het programma. Belangrijk is echter dat deze baanberekeningen een op zichzelf staand probleem vormen.

### 2.5. Semiklassiek Model

#### 2.5.1. "Single-curve-crossing Model"

Om uiteindelijk gepolariseerde botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow r}^{M_R}$  te kunnen berekenen, hebben we behoefte aan totale overgangswaarschijnlijkheden  $P_{kl}^{M_R}$  die alle soorten van koppelingen in zich verenigen. We moeten dus de mechanismen van radiële koppeling, rotationele koppeling en locking integreren, en combineren met informatie over de deeltjesbanen.

Aan ons semiklassiek model ligt een drietal benaderingen ten grondslag. Ten eerste wordt de radiële koppeling strikt gelocaliseerd verondersteld bij de crossing-radius  $R_C$ . Dit maakt een volledige scheiding van radiële en rotationele koppeling mogelijk. Ten tweede wordt, zoals eerder al aangeduid, geacht een scherpe overgang plaats te vinden tussen zuivere rotatiekoppeling en locking bij de locking-radius  $R_L$ . Tenslotte, wat de deeltjesbanen betreft, gaan we uit van de besproken harde-bol verstrooiing bij het klassieke omkeerpunt  $R_T$ .

In Fig. 2.12. wordt geïllustreerd waarop dit alles in de praktijk neerkomt voor het "single-curve-crossing" model. Dit model beschrijft botsinggeïnduceerde overgangen die via slechts één avoided crossing tot stand komen. Ten bate van de overzichtelijkheid zullen we hier de vereenvoudigde notatie  $M_k = M_{k,z}$  gebruiken.

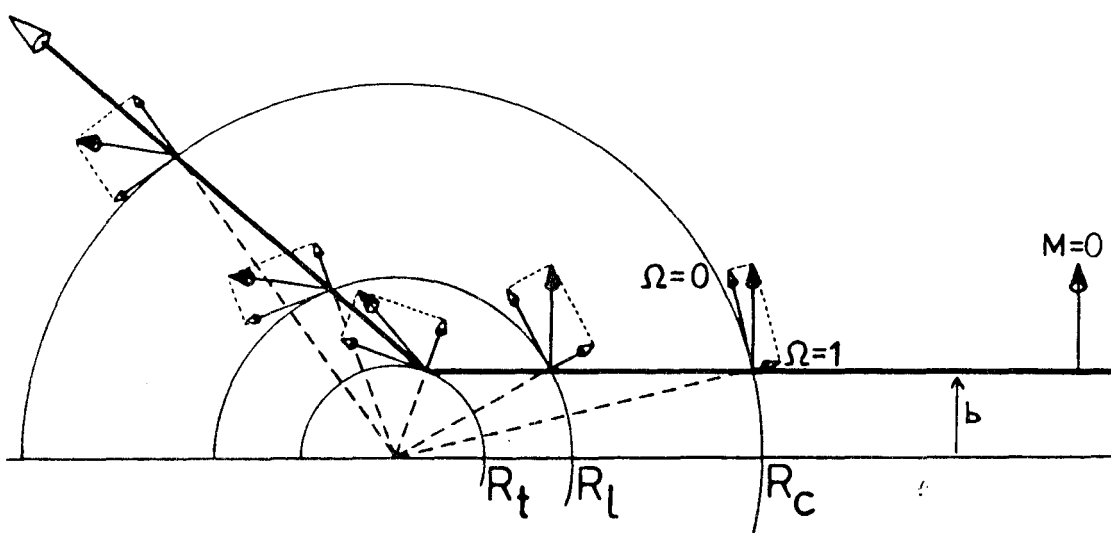


Fig.2.12. : Overzicht van het totale verstrooiingsproces volgens het presenteerde semiklassieke "single-curve-crossing" model: rotatiekoppeling, locking, radiële koppeling en harde-bol verstrooiing.

Langs de deeltjesbaan zijn een viertal gebieden te onderscheiden :

1.  $R > R_L$  : De bezettingsgraden  $C_R^{M_k}$  van zuivere  $|\alpha_R J_R M_R\rangle$  toestanden veranderen ten gevolge van rotatiekoppeling.
2.  $R = R_C$  : Een eventuele overgang tussen toestanden  $N e^{**} \{\alpha\}_R$  en  $N e^{**} \{\alpha\}_L$  is mogelijk met een waarschijnlijkheid  $P_{R \rightarrow L}^{M_k}$  ten gevolge van radiële koppeling.
3.  $R_T < R < R_L$  : De bezettingsgraden  $C_R^{M_k}$  veranderen niet meer doordat het elektronisch impulsmoment  $\vec{J}$  "gelockt" is aan de internucleaire as.
4.  $R = R_T$  : De deeltjes worden verstrooid aan de harde bol.

Evenals in de Landau-Zener theorie maken we onderscheid tussen de inkomende en uitgaande passage van de avoided crossing. Dan kunnen we, onder verwaarlozing van interferentie-effecten, een algemene uitdrukking afleiden voor de totale waarschijnlijkheid  $P_{k \leftarrow l}^{M_k}$  waarmee een gepolariseerde  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$  begintoestand tijdens de botsing overgaat in een andere  $Ne^{**}\{\alpha\}_l$  toestand. Uitgaande van Vgl. (2.20) krijgen we dan :

$$\begin{aligned}
 P_{l \leftarrow k}^{M_k}(b) = & \sum_{M'=-J_k}^{J_k} g_k^{M_k M'} (\gamma_{\omega \rightarrow R_c}) P^{M'}(b) \sum_{M''=-J_l}^{J_l} g_l^{M' M''} (\gamma_{R_c \rightarrow R_l} + \gamma_{R_l \rightarrow R_c}) (1 - P^{M''}(b)) \\
 & + \sum_{M'=-J_k}^{J_k} g_k^{M_k M'} (\gamma_{\omega \rightarrow R_c}) [1 - P^{M'}(b)] \sum_{M''=-J_l}^{J_l} g_l^{M' M''} (\gamma_{R_c \rightarrow R_l} + \gamma_{R_l \rightarrow R_c}) P^{M''}(b)
 \end{aligned} \tag{2.39}$$

Verwaarlozing van interferentie-effecten lijkt redelijk, in het licht van onze berekening van totale botsingsdoorsnedes. In het algemeen zijn voor een experiment, waarbij via meting van fluorescentiestraling alleen bezettingsgraden toegankelijk zijn, coherentie-effecten niet van belang. Ook de experimentele snelheidsverdelingen leveren een middelingseffect op.

In die situaties waar de Landau-Zener theorie van toepassing is kunnen we direct de overgangswaarschijnlijkheid  $p_{k \leftarrow l}^{M_k}$  voor een enkele passage van de avoided crossing berekenen. Bij het lineaire model van Nikitin worden echter alleen totale overgangswaarschijnlijkheden  $P_{k \leftarrow l}^{M_k}$  bepaald. In dat geval introduceren we daarom een "effectieve" overgangskans  $p_{k \leftarrow l}^{M_k \text{ eff}}$  voor enkele passage van de avoided crossing volgens  $P_{k \leftarrow l}^{M_k} = 2p_{k \leftarrow l}^{M_k \text{ eff}} (1 - p_{k \leftarrow l}^{M_k \text{ eff}})$ .

Wanneer  $R_T \approx R_C$  kunnen interferentie-effecten eveneens zonder meer in rekening worden gebracht. Dan kunnen we immers het principe van afzonderlijke inkomende en uitgaande passages van de avoided crossing verlaten, en is tevens de rotatie van de internucleaire as tussen de crossingradius en het omkeerpunt verwaarloosbaar. Om dezelfde reden is er wat tunneling betreft geen beperking. In deze situaties ( $R_T \approx R_C$ ) kunnen we Vgl. (2.39) vereenvoudigen tot :

$$P_{l \leftarrow k}^{M_k}(b) = \sum_{M'=-J_k}^{J_k} g_k^{M_k M'} (\gamma_{\omega \rightarrow \max(R_c)}) P_{l \leftarrow k}^{|M|}(b) \tag{2.40}$$

De rechte deeltjesbanen maken de berekening van de rotatiehoeken  $\gamma$  zeer eenvoudig. Tijdens de inkomende beweging geldt bijvoorbeeld dat

$$\gamma_{\infty \rightarrow R_c} = \arcsin \left( \frac{b}{R_c} \right) \quad (2.41)$$

terwijl de afbuighoek  $\theta_T$  voor harde-bol verstrooiing bij het omkeerpunt gegeven wordt door

$$\theta_{R_T} = 2 \arcsin \left( \frac{b}{R_T} \right) \quad (2.42)$$

We moeten daarbij wel bedenken dat zowel het omkeerpunt  $R_T$  als de lockingradius  $R_L$  in principe  $b$ -afhankelijk zijn.

De hier gepresenteerde gecompliceerde, doch zeer anschouwelijke, berekening van de overgangswaarschijnlijkheid  $P_{k \rightarrow l}^{M_k}(b)$  gebeurt per computer in de programmeertaal PEP [VER81].

### 2.5.2. "Multiple-curve-crossing" Model

De in de voorgaande paragraaf gegeven beschrijving van de berekening van de overgangswaarschijnlijkheid  $P_{k \rightarrow l}^{M_k}(b)$  dient enigszins gemodificeerd te worden, indien een botsinggeïnduceerde  $Ne^{**}\{\alpha\}_k \Rightarrow Ne^{**}\{\alpha\}_l$ -overgang verloopt via meerdere avoided crossings. Deze mogelijkheid wordt geïllustreerd in Fig. 2.13, waar voor het systeem  $Ne^{**}$ -He de adiabatische potentiaalcurven voor  $\Omega=1$  zijn weergegeven.

In het hiervoor ontwikkelde "multiple-curve-crossing" model wordt de totale overgangswaarschijnlijkheid  $P_{k \rightarrow l}^{M_k}$  in essentie bepaald door alle trajecten over de adiabatische potentiaalcurven na te gaan, waarlangs we vanuit een  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$ -toestand een  $Ne^{**}\{\alpha\}_l$ -toestand kunnen bereiken. Voor elk traject valt de bijdrage  $\Delta P_{k \rightarrow l}^{M_k}$  aan de totale overgangskans te schrijven als een produkt van "doorschiet-kansen"  $p_I$ ,  $p_{II}$  of  $p_{III}$  (= diabatisch doorlopen van de respectieve avoided crossings I, II en III) en "volg-kansen"  $1-p_I$ ,  $1-p_{II}$  en  $1-p_{III}$  (= adiabatisch doorlopen van de crossings). Zo vinden we bijvoorbeeld voor de overgangswaarschijnlijkheid  $P_{46}$  tussen toestanden  $\{\alpha\}_4$  en  $\{\alpha\}_6$  dat

$$P_{46} = p_I \{ 2p_{II}(1-p_{II}) \} \cdot (1-p_{III}) \quad (2.43)$$

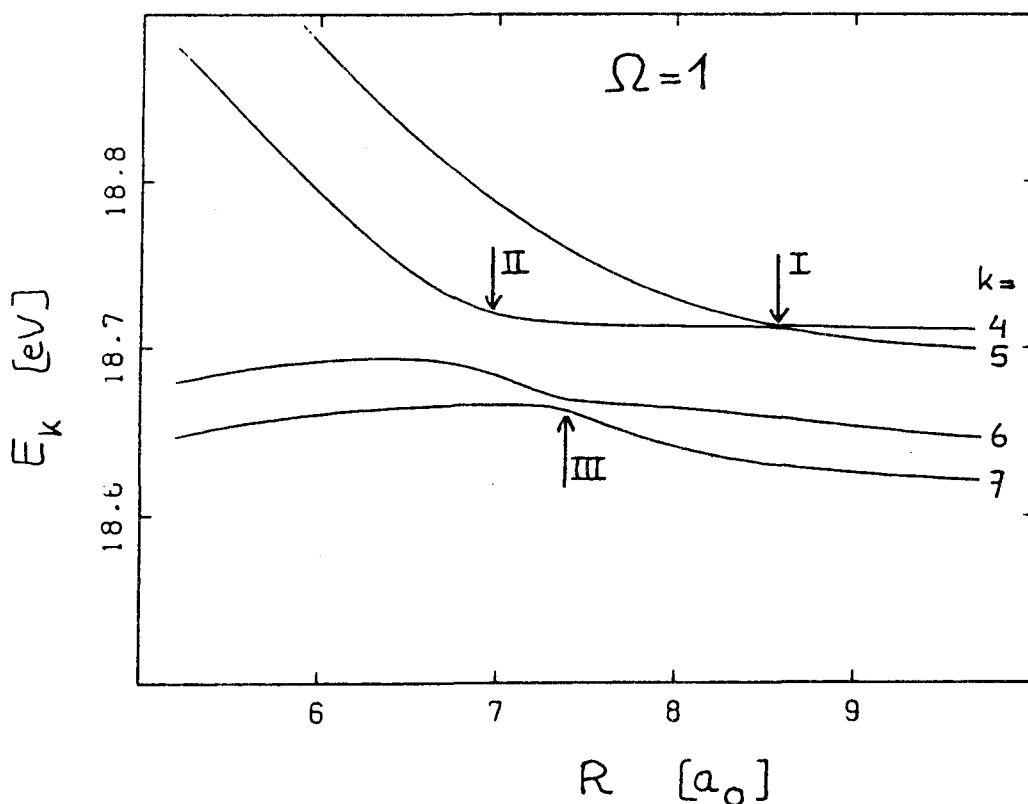


Fig.2.13. : Diagram van de avoided crossings van de  $\{\alpha\}_{4,5,6,7}$ -potentiaalcurves voor  $\Omega = 1$ .

Het verdient vermelding dat een dergelijk gecompliceerd model natuurlijk vereenvoudigd kan worden indien de referentiesnelheden  $v_{kl}$  van de betrokken avoided crossings van verschillende grootte-orde zijn. Veronderstel bijvoorbeeld dat crossing II uit Fig. 2.13 een veel hogere referentiesnelheid heeft dan crossing I. Een lage radiële deeltjessnelheid (= kleine botsingsparameter) is dan vereist om via crossing I met redelijke kans een overgang tussen de  $\{\alpha\}_4$  en  $\{\alpha\}_5$  toestanden te krijgen. Dit betekent dan automatisch dat bij crossing II veelal de adiabatische potentiaalcurve  $E_5^\Omega(R)$  gevolgd wordt. De  $\{\alpha\}_4 \leftrightarrow \{\alpha\}_5$  overgangen kunnen dus beschreven worden met een geïsoleerde crossing I, waarbij "lek" via crossing II te verwaarlozen is.

Voor de introductie van rotatiekoppeling cq. locking, alsmede het optreden van avoided crossings bij meerdere  $\Omega$ -waarden, dienen we langs elk traject afzonderlijk de gehele deeltjesbaan te volgen. Vanwege de verschillende te volgen adiabatische potentiaalcurven  $E_k^\Omega(R)$ , elk met bijbehorende verschillende omkeerpunten  $R_T$  en locking-radii  $R_L$ , en de per



avoided crossing verschillende bezettingsgraden  $G_k^{\Omega_k}$  van zuivere toestanden vraagt dit om een nauwgezette administratie. Het probleem is niettemin in principe geheel oplosbaar. In ons geval zijn zelfs enige vereenvoudigingen mogelijk. Zo treden de avoided crossings voor de in onze experimenten belangrijke overgangen selectief op voor slechts een  $\Omega_k$ -waarde ( $P_{k \leftrightarrow l}^{\Omega_k} = 0$  voor  $\Omega = \Omega_k$ ). Het lijkt zinvol een bespreking van de details van deze aanpak te bewaren voor hoofdstuk 5, waar het model aan de praktijk wordt getoetst. In het algemeen kunnen we zeggen dat het "multiple-curve-crossing" model geschikt is voor de bepaling van zowel ongepolariseerde als gepolariseerde botsingsdoorsnedes.

## 2.6. Werkzame Doorsnedes

Met behulp van de gepresenteerde semiklassieke modellen willen we totale werkzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$  voor botsinggeïnduceerde overgangen binnen het  $Ne^{**}$  multiplet bepalen. Ons doel daarbij is om oriëntatie-effecten en energieafhankelijkheden van het botsingsproces van Vgl. (1.1) fysisch beter te begrijpen.

### 2.6.1. Berekening van Werkzame Doorsnedes

Zoals toegelicht is in paragraaf 2.1 en zoals ook al spreekt uit het voorgaande, verwachten we dat het verloop van het  $Ne^{**}$ -X botsingsproces beïnvloed zal worden door de initiële oriëntatie  $|M_k\rangle_z$  van het electronisch impulsmoment  $\vec{J}$  langs de asymptotische relatieve snelheid  $g_{Ne^{**}-X}$  (z-as). Voor elke begin-oriëntatie  $M_k$  definiëren we daarom de zogenaamde gepolariseerde werkzame doorsnede  $Q_{l \leftarrow k}^{|M_k\rangle}$  voor de  $\{\alpha\}_k \rightarrow \{\alpha\}_l$ -overgangen. Hierbij maken we geen onderscheid naar de eventuele polarisatie van de  $Ne^{**}$   $\{\alpha\}_l$ -eindtoestand.

In de vorige paragraaf is uitgebreid stilgestaan bij de berekening van de totale overgangswaarschijnlijkheid  $P_{l \leftarrow k}^{|M_k\rangle}$ , voor de overgang tussen toestanden  $|\alpha_k J_k M_k\rangle$  en  $|\alpha_l J_l M_l\rangle$  bij zekere botsingsparameter  $b$ . De bijdrage van alle deeltjesbanen met een botsingsparameter tussen  $b$  en  $b+db$  aan de gepolariseerde botsingsdoorsnede  $Q_{l \leftarrow k}^{|M_k\rangle}$  wordt daarmee gegeven door

$$\Delta Q_{l \leftarrow k}^{|M_k|} = 2\pi b \text{ db } P_{lk}^{|M_k|} (b) \quad (2.44)$$

We herinneren eraan dat de Landau-Zener theorie interferentie-effecten buiten beschouwing laat, terwijl deze in het lineaire model van Nikitin zijn nabegrepen.

Op grond van de correspondentierelatie Vgl. (2.37) kunnen we Vgl. (2.44) ook schrijven als

$$\Delta Q_{l \leftarrow k}^{|M_k|} = 2\pi \lambda^{2(N+1/2)} P_{lk}^{|M_k|} (N) \quad (2.45)$$

Ongepolariseerde botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$  vinden we door een gewogen sommatie van gepolariseerde doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{|M_k|}$  over alle mogelijke  $M_k$ -waarden :

$$\Delta Q_{l \leftarrow k} (N) = \sum_{M_k = -J_k}^{J_k} \frac{1}{2J_k + 1} \Delta Q_{l \leftarrow k}^{|M_k|} \quad (2.46)$$

### 2.6.2. Oriëntatie-effecten

In de werkzame doorsnedes voor het botsingsproces nemen we juist dan grote oriëntatie-effecten waar, indien de afzonderlijke gepolariseerde botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{|M_k|}$  sterk verschillen. In deze paragraaf willen we, binnen het kader van ons semiklassiek model, het optreden van oriëntatie-effecten aanschouwelijk maken. Wanneer we later de bestudeerde overgangen nader bezien, zal het algemene principe dat hier aan de orde wordt gesteld meer in detail worden uitgewerkt.

Voor de duidelijkheid nemen we hier even aan dat per overgang slechts voor één  $\Omega$ -waarde een avoided crossing voorkomt, een situatie die overigens nauw bij de praktijk aansluit. Door het principe van  $\Omega$ -opmenging tijdens de botsing per botsingsparameter te bezien, kunnen we een verband leggen tussen de referentiesnelheid  $\vec{v}_{kl}$  van een avoided crossing en het optreden van oriëntatie-effecten in de botsingsdoorsnede  $Q_{l \leftarrow k}$ .

Bij avoided crossings met een hoge referentiesnelheid zullen vooral de kleine botsingsparameters ( $\vec{v}_R \approx g$ ) bijdragen aan  $Q_{l \leftarrow k}$ . Voor deze

botsingsparameters treedt nauwelijks  $\Omega$ -opmenging op, daar de internucleaire as bij het bereiken van de crossing-radius nog weinig geroteerd zal zijn. Daarenboven is er voor deze "kopse" botsingen zeer weinig rotationele koppeling voor  $R < R_C$ , zodat ook bij de tweede passage van de avoided crossing nog van  $\Omega$ -behoud sprake is. We verwachten hier dus grote polarisatie-effecten waar te nemen.

Bij avoided crossings met een lagere referentiesnelheid dragen juist de grotere botsingsparameters, behorende bij "volle" botsingen, bij tot  $Q_{l \leftarrow k}$ . Door de grote  $\Omega$ -opmenging ten gevolge van rotationele koppeling tijdens de botsing zal het oriëntatie-effect min of meer uitmiddelen.

Voor avoided crossings met een zeer lage referentiesnelheid tenslotte zijn de botsingsparameters  $b \approx R_C$ , behorend bij "scherende botsingen", het meest belangrijk. In dit geval is de rotationele koppeling zo sterk dat zelfs een  $\Omega$ -inversie optreedt. Aangezien ook hier voor  $R < R_C$  rotationele koppeling nauwelijks een rol speelt, geldt ditzelfde voor de tweede passage van de avoided crossing, zodat we grote polarisatie-effecten mogen verwachten. In Fig. 2.14 wordt dit alles schematisch weergegeven.

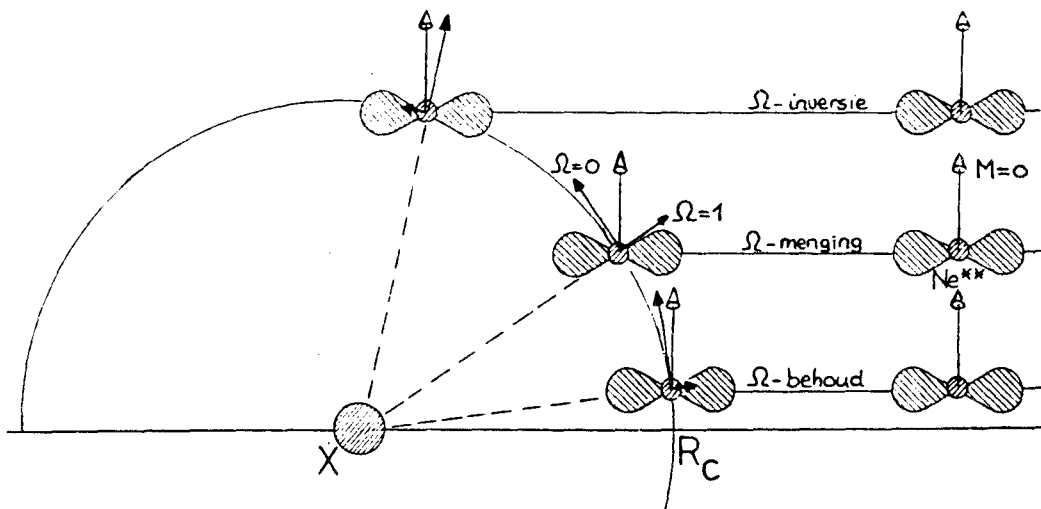


Fig.2.14. : Drie limietgevallen van rotationele koppeling:  
 $\Omega$ -behoud ( $b \ll R_C$ ),  $\Omega$ -menging en  $\Omega$ -inversie ( $b \approx R_C$ ).

### 2.6.3. Energieafhankelijkheid van Botsingsdoorsnedes

De werkzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$ , berekend met behulp van het semiklassieke model voor radiële koppeling, zijn afhankelijk van de totale massamiddelpuntsenergie  $E_R = \frac{1}{2}\mu g^2$  ter plekke van de crossing-radius  $R_C$ . Voor de oorspronkelijke Landau-Zener theorie bevat de overgangswaarschijnlijkheid  $P_{l \leftarrow k}(b)$  de belangrijke factor  $v_{kl}/v_R$ , waarbij

$$v_R = g_C \sqrt{1 - \left(\frac{b}{R_C}\right)^2} \quad (2.47)$$

In Fig. 2.15 is de botsingsdoorsnede  $Q_{l \leftarrow k} = \int 2\pi b \cdot P_{l \leftarrow k}(b) \cdot db$  getekend als functie van de met  $v_R/v_{kl}$  corresponderende geschaalde energie  $E_{kl}/E_R$ . Wanneer we  $E_R$  vertalen naar de botsingsenergie  $E_0 = \frac{1}{2}\mu g^2$ , dan zal de schaal langs de X-as verschuiven. Voor exotherme reacties ontstaat dan een drempelwaarde voor de radiële energie, waarbeneden geen botsinggeïnduceerde overgang mogelijk is. In Fig. 2.15 herkennen we nog steeds, zij het minder geprononceerd, de in paragraaf 2.3 besproken snelheidsgebieden voor elastische- en inelastische verstrooiing.

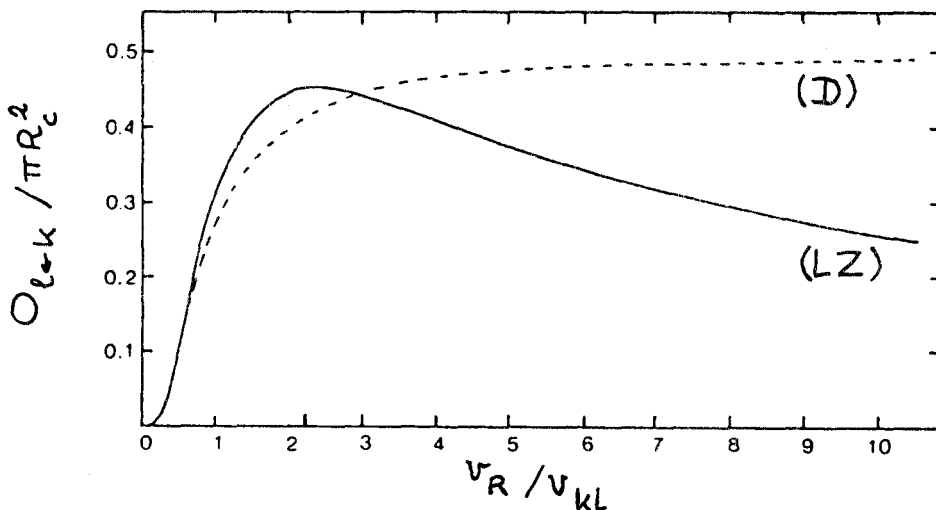


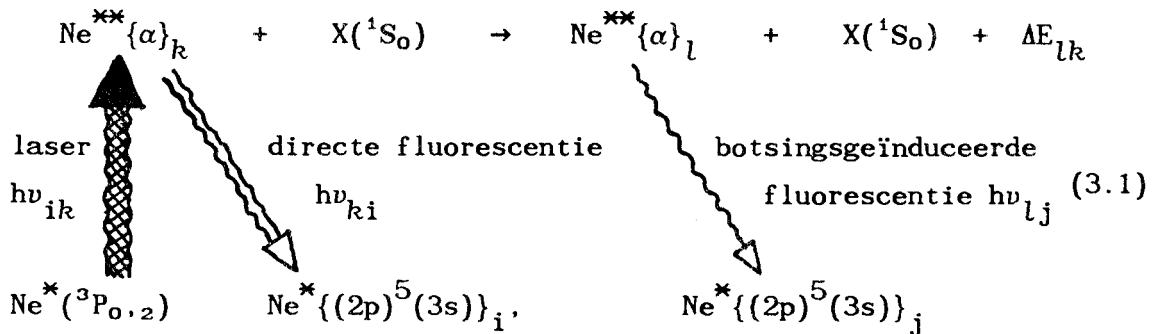
Fig. 2.15. : Snelheidsafhankelijkheid van de botsingsdoorsnede  $Q_{l \leftarrow k}(g)$  berekend met het Landau-Zener model [LZ] respectievelijk het Demkov model [D].

### HOOFDSTUK 3 : EXPERIMENT

#### 3.1. Gekruiste-Bundel Experiment

Bij een volledige beschrijving van het experiment moeten we ons niet alleen met het botsingsproces van Vgl. (1.1) zelf, maar ook met de produktie van de daarbij betrokken kortlevende  $\text{Ne}^{**}$ -deeltjes bezighouden.

Het Minibundel-1 experiment is een gekruiste-bundel experiment. We kunnen het samenvatten in de volgende reactie-vergelijking(en):



In ons gekruiste-bundel apparaat, dat zal worden beschreven in paragraaf 3.3, wordt een hoofdbundel van metastabiele  $\text{Ne}^*\{^3P_{0,2}\}$ -atomen loodrecht gesneden door een laserbundel die is afgestemd op de atomaire overgangsfrequentie  $\nu_{ik}$ . Het hierdoor gedefinieerde botsingsvolume wordt doorkruist door een dwarsbundel van grondtoestand-deeltjes X (vergelijk Fig. 3.1).

De metastabiele  $\text{Ne}^*\{^3P_{0,2}\}$ -atomen in de hoofdbundel (levensduur  $\tau > 1$  s) worden binnen het botsingsvolume door het resonante laserveld geëxciteerd naar een van de kortlevende toestanden van het  $\text{Ne}^{**}\{\alpha\}$ -multiplet. De zo gevormde  $\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_k$ -atomen zullen voor het overgrote deel vrijwel onmiddellijk terugvallen naar de lager gelegen toestanden van het  $\text{Ne}^*\{(2p)^5(3s)\}$ -multiplet. Dit gebeurt onder uitzending van zogenaamde "directe" fluorescentiestraling.

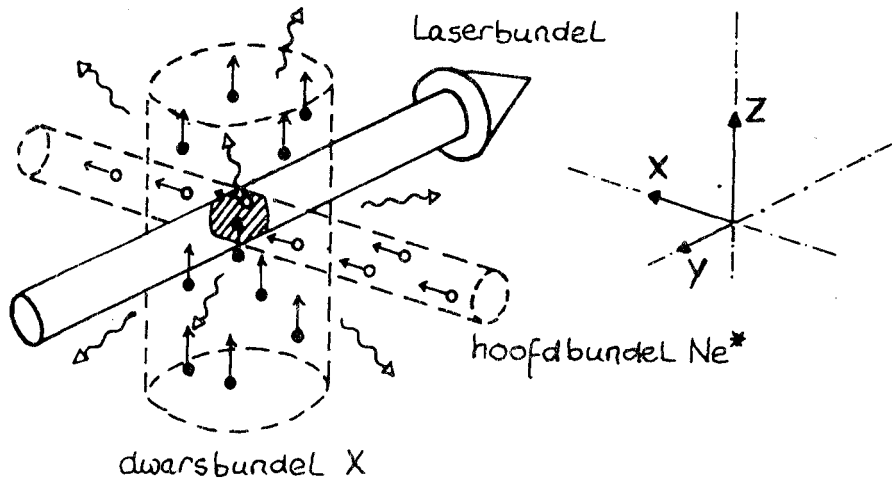


Fig.3.1. : Schematisch beeld van het gekruiste-bundel experiment.

Een klein gedeelte ( $0[10^{-5}]$ ) van de  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$ -atomen zal echter een botsing met een dwarsbundel-deeltje X ondergaan. Hierbij kan het  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$ -atoom een inelastische overgang maken naar een andere toestand uit het  $Ne^{**}$ -multiplet, bijvoorbeeld de  $Ne^{**}\{\alpha\}_l$ -toestand. De dwarsbundeldeeltes, in ons geval edelgas-atomen, blijven in de grondtoestand. Het inelastische botsingsproces kan zowel exotherm ( $\Delta E_{lk} > 0$ ) als endotherm ( $\Delta E_{lk} < 0$ ) verlopen (dit laatste indien de botsingsenergie voldoende groot is). De aldus gevormde  $Ne^{**}\{\alpha\}_l$  atomen zullen ook weer vrijwel onmiddellijk vervallen, onder uitzending van zogenaamde "botsinggeïnduceerde" fluorescentiestraling.

Zowel directe als botsinggeïnduceerde fluorescentiestraling omvatten meestal meerdere fluorescentielijnen. In ons experiment detecteren we slechts een enkele lijn van zowel de directe fluorescentie vanuit de begintoestand  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$  als de botsinggeïnduceerde fluorescentie vanuit de eindtoestand  $Ne^{**}\{\alpha\}_l$ . Deze beide meetsignalen zijn een directe maat voor de aantallen in deze toestanden aanwezige atomen.

Door het directe signaal te gebruiken als calibratie van het botsinggeïnduceerde fluorescentiesignaal, kunnen we absolute botsingsdoorsnedes voor de inelastische  $Ne^{**}\{\alpha\}_k \rightarrow Ne^{**}\{\alpha\}_l$ -overgang berekenen.

### 3.2. Experimentele fluorescentiesignalen

#### 3.2.1. Directe- en botsinggeïnduceerde fluorescentie

De bijdrage  $dI(\vec{r})$  van een ruimtevolumen  $d\vec{r}$  ter plaatse van  $\vec{r}$  aan het totale experimentele fluorescentiesignaal  $I$  volgt direct uit het aantal fluorescentiefotonen  $d\dot{N}$ , dat in dit ruimtevolumen per tijdseenheid wordt uitgezonden bij het verval van de kortlevende  $Ne^{**}$  atomen, en uit de totale efficiency  $\eta(\vec{r})$  waarmee deze fotonen gedetecteerd worden :

$$dI(\vec{r}) = \eta(\vec{r}) d\dot{N} \quad (3.2)$$

De produktiesnelheid van de directe-fluorescentie fotonen  $d\dot{N}_k$  wordt via  $d\dot{N}_k = A_k n_k^T(\vec{r}) d\vec{r}$  bepaald door de Einstein-coëfficiënt  $A_k$  (= inverse levensduur  $\tau_k^{-1}$ ) voor spontaan verval van kortlevende  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$  atomen en door de dichtheid  $n_k^T(\vec{r})$  van deze atomen in de hoofdbundel ter plaatse  $\vec{r}$ . Wanneer we  $n_k(\vec{r})$  definiëren als de dichtheid van  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$  atomen ten gevolge van laser-excitatie van de metastabiele  $Ne^*\{^3P_{0,2}\}$  atomen bij afwezigheid van een dwarsbundel en  $T_k(\vec{r})$  als de verzwakking van de hoofdbundel door elastische botsingen met dwarsbundel-deeltjes, dan geldt  $n_k^T(\vec{r}) = T_k(\vec{r}) n_k(\vec{r})$ . Het totale directe fluorescentiesignaal  $I_k$  kunnen we dan na integratie over het botsingsvolume  $V$  schrijven als:

$$I_k = \int_V dI_k(\vec{r}) = A_k \int_V \eta_k(\vec{r}) n_k(\vec{r}) d\vec{r} \quad (3.3)$$

De overgangssnelheid  $d\dot{N}_{lk}$  van  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$  atomen naar een andere kortlevende toestand  $Ne^{**}\{\alpha\}_l$  ten gevolge van inelastische botsingen met dwarsbundel-deeltjes  $X$  wordt gegeven door  $d\dot{N}_{lk} = n_k^T n_X(\vec{r}) g(\vec{r}) Q_{l \leftarrow k}(g) d\vec{r}$ . Hierin is  $n_X(r)$  de dichtheid van dwarsbundel-deeltjes,  $g(\vec{r})$  de relatieve snelheid van hoofd- en dwarsbundel en  $Q_{l \leftarrow k}(g)$  de inelastische werkzame doorsnede voor het botsingsproces van Vgl. (1.1). Aangezien slechts een geringe fractie ( $\mathcal{O}[10^{-5}]$ ) van deze  $Ne^{**}\{\alpha\}_l$  atomen een tweede inelastische overgang maakt mogen we stellen dat de  $Ne^{**}\{\alpha\}_l$  toestand alleen door spontaan verval ontvolkt wordt. De produktiesnelheid van botsinggeïnduceerde fluorescentie fotonen  $d\dot{N}_l$  is dan gelijk aan  $d\dot{N}_l \equiv d\dot{N}_{lk}$ . Het totale botsinggeïnduceerde fluorescentiesignaal  $I_l$  wordt hiermee:

$$I_l = \int_V d^3 I_i(\vec{r}) = A_k \int_V \eta_l(\vec{r}) T_k(\vec{r}) n_k(\vec{r}) n_X(\vec{r}) g(\vec{r}) Q_{lk}(g) d\vec{r} \quad (3.4)$$

Met behulp van Vgl. (3.3) en (3.4) en uitdrukkingen voor de plaatsafhankelijke grootheden hierin, kunnen we de botsingsdoorsnede  $Q_{lk}$  bepalen uit de verhouding  $I_l/I_k$  van de directe en botsinggeïnduceerde fluorescentiestraling. Aan de daarvoor benodigde calibratie van het experiment besteden we in paragraaf 3.5 wat meer aandacht. De integratie over het botsingsvolume  $V$  wordt begrensd door de ruimtelijke uitgebreidheid van de dichtheidsverdeling  $n_k(r)$ . In het geval van een sterk gelocaliseerde verdeling  $n_k(\vec{r})$  van de kortlevende  $Ne^{***}\{\alpha\}_k$  atomen vinden we als vereenvoudigingen

$$I_k \simeq \eta_k \dot{N}_k \quad (3.5)$$

$$I_l \simeq \eta_l \dot{N}_l \frac{g}{v_{e^*}} n_X l_\tau Q_{lk} \quad (3.6)$$

met  $v_{Ne^*}$  de gemiddelde snelheid van de hoofdbundel-deeltjes en  $l_\tau \simeq v_{Ne^{***}}/A_k$ , de levenslengte van de  $Ne^{***}\{\alpha\}_k$  atomen. Hierin herkennen we naast de factor  $g/v_{Ne^*}$  voor de transformatie van massamiddelpunt-systeem naar laboratorium-systeem het bekende effectieve "nlQ"-produkt uit de botsingsfysica.

### 3.2.2. Experimentele problemen en vereisten

De uitdrukkingen (3.5) en (3.6) voor de experimentele fluorescentiesignalen  $I_k$  en  $I_l$  laten zien dat een experimentele bestudering van het botsingsproces van Vgl. (1.1) geen eenvoudige opgave is. De zeer korte levenslengte  $l_\tau$  ( $\approx 20-100$  um) van de kortlevende  $Ne^{***}\{\alpha\}$  atomen en de kleine inelastische botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$  ( $< 15 \text{ \AA}^2$ ) maken dat de botsinggeïnduceerde fotonenflux  $\dot{N}_l$  ( $0[10^6]$ ) vele orden kleiner is dan de directe fotonenflux  $\dot{N}_k$  ( $0[10^{11}]$ ).

Willen we de fluorescentiesignalen toch goed kunnen meten, dan moeten we aan het experiment de volgende eisen stellen:



- Hoge detectie-efficiency's  $\eta_l$  en  $\eta_k$  voor de fluorescentiestraling.
- Grote hoofd- en dwarsbundel-dichtheden  $n_k$  en  $n_x$ .
- Sterke onderdrukking van directe fluorescentiestraling bij meting van botsinggeïnduceerde fluorescentie ( $\eta_k \ll \eta_l$ ).

### 3.3. Minibundel-apparaat

Voor de bestudering van botsinggeïnduceerde overgangen binnen het kortlevende  $\text{Ne}^{**}$ -multiplet, ook wel "intra-multiplet-mixing" genoemd, werd in 1984 de Minibundel-1 opstelling opgezet [RUY84]. Deze gekruiste-bundel opstelling, waarvan een schematische schets te zien is in Fig. 3.2, is speciaal ontworpen met als belangrijkste oogmerk dat de fluorescentiesignalen  $I_k$  en  $I_l$  voldoende groot zouden zijn om ze van de achtergrondsignalen en van elkaar te onderscheiden. Daarom is gekozen voor een, in vergelijking tot de gangbare bundelmachines, zeer compact apparaat.

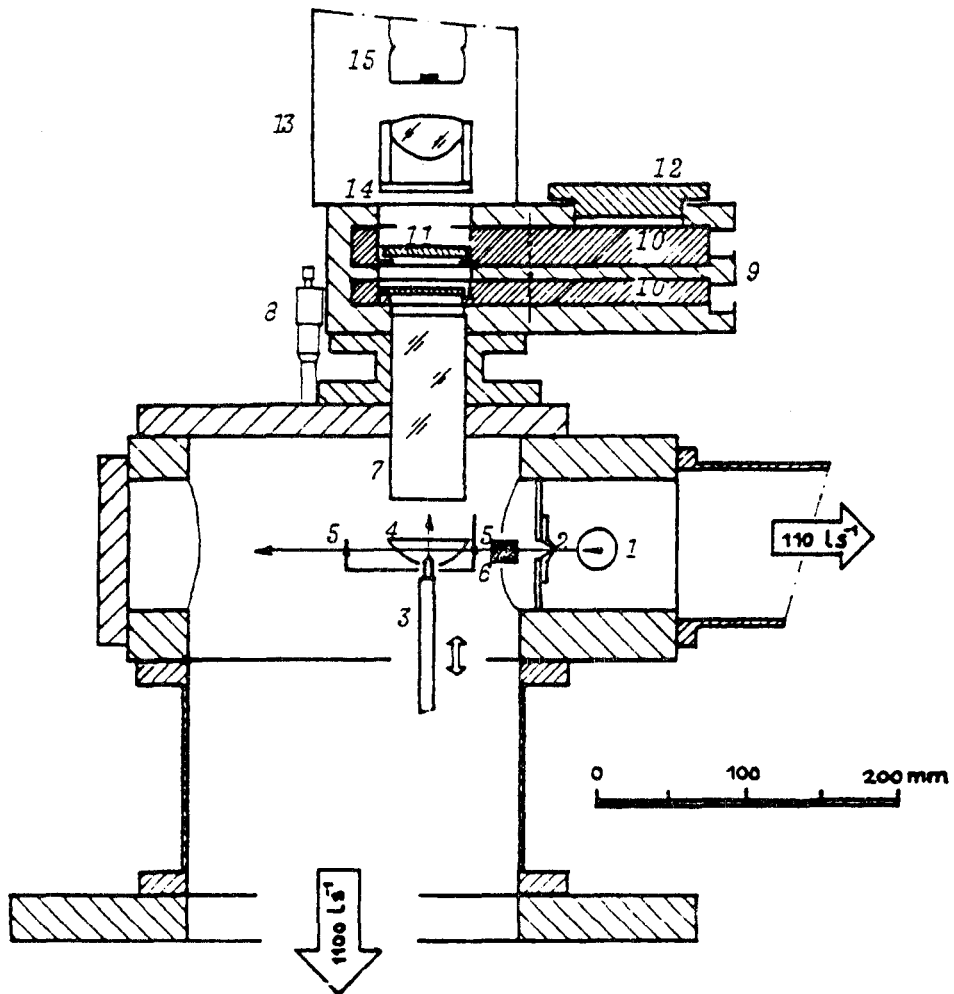
#### 3.3.1. Bundels

Hieronder staan we nader stil bij de deeltjes- en laserbundels waarmee de experimenten in de Minibundel-1 opstelling worden uitgevoerd. We maken daarbij onderscheid naar de twee processen die van belang zijn : het botsingsproces en het modulatieproces voor looptijdmetingen.

##### **A. Botsingsproces**

Bij het botsingsproces van Vgl. (3.1) spelen, zoals gezegd, drie bundels een rol, te weten de hoofd-, dwars- en laserbundel.

De hoofdbundel van metastabiele  $\text{Ne}^*$ -atomen wordt gevormd door een ontladings-geëxciteerde supersone expansie door een nozzle. We spreken van een thermische metastabielenbron [VER84]. De dichtheidsverhouding  $\text{Ne}^* \{^3P_0\} : \text{Ne}^* \{^3P_2\}$  wordt bepaald door de statistische gewichten van de twee metastabiele toestanden, en is ruwweg 1:5. De hoofdbundel wordt door een



Figuur 3.2: Schets van de "Minibundel I"-opstelling.

- 1: thermische metastabielen bron
- 2: skimmer
- 3: parabolische spiegel
- 5: hoofdbundel diafragma
- 6: elektroden voor ionen- en electronenvangst
- 7: lichtpijp
- 8: micrometer nozzle-instelling
- 9: filterhuis
- 10: roteerbare filterhouders
- 11: filter
- 12: inlegopening
- 13: fotomultiplierhuis
- 14: lens
- 15: fotomultiplier

skimmer ( $\varnothing$  0.5 mm) en een diafragma ( $\varnothing$  1.0 mm) gecollimeerd tot ongeveer  $\varnothing$  1.2 mm in het botsingsvolume. Met behulp van een tweetal afbuig-electrodes ( $\pm 100$  V) worden ionen en elektronen uit de hoofdbundel verwijderd. De metastabiele  $\text{Ne}^*$ -atomen hebben een in goede benadering gaussische snelheidsverdeling, gepiekt rond  $v \approx 1000$  m/s. In de toekomst is ook het gebruik van een holle-kathode-boog ( $v \approx 5000$  m/s) [THE82] in de opstelling voorzien.

Een laserbundel, lineair gepolariseerd, afkomstig uit een continuus-wave dye-laser systeem [MAN84, HOES6], kruist de hoofdbundel loodrecht. Deze laserbundel wordt gecollimeerd door een diafragma ( $\varnothing$  1.3 mm) en door een lens zodanig afgebeeld dat de waist ( $w_d \approx 0.5$  mm) in het botsingsvolume ligt. De laserfrequentie is binnen  $\Delta\nu \approx 0.5$  MHz (RMS-waarde) gestabiliseerd op de atomaire overgangsfrequentie  $\nu_{ik}$  en daarenboven dynamisch afstembaar binnen een bereik van  $\Delta\nu_{ik} \pm 200$  MHz [VER82]. Het laservermogen, typisch 0.10 mW in het botsingsvolume, wordt geregeld en gestabiliseerd ( $\pm 2\%$ ) met een electro-optische modulator [VLUS1]. De polarisatierichting van de laserbundel kan worden gerooteerd met een  $\lambda/4$ -plaatje.

Vanwege de korte levenslengte  $l_\tau \approx 20$   $\mu\text{m}$  van de kortlevende  $\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_k$ -atomen bepaalt deze "excitatie"-laserbundel samen met de hoofdbundel de ligging van het botsingsvolume. Voor een nauwkeurige uitlijning en positionering van de laserbundel is daarom een aantal optische elementen in de lichtbundel opgenomen, alsmede een tweetal quadrantdiodes. In paragraaf 3.5 gaan we op deze uitlijning dieper in.

De dwarsbundel van grondtoestand He of Ne atomen bestaat uit een vrije supersone expansie (nozzlestraal  $R_n \approx 25$   $\mu\text{m}$ ). Door verticale verplaatsing van de nozzle kunnen we de afstand van de bron tot de hoofdbundel-as variëren tussen 0 en 4 mm. De dwarsbundel-deeltjes hebben evenals de hoofdbundeldeeltjes bij benadering een gaussische snelheidsverdeling ( $v_{\text{He}} \approx 1760$  m/s,  $v_{\text{Ne}} \approx 780$  m/s). Kenmerkend voor zowel de hoofd- als de dwarsbundel zijn de grote deeltjesdichtheden in het botsingsvolume (respectievelijk  $0[10^{14} \text{ m}^{-3}]$  en  $0[10^{20} \text{ m}^{-3}]$ ). Dit is bereikt door de uitstroomopening van beide bundels dicht bij het botsingsvolume te plaatsen (op respectievelijk  $\pm 95$  mm en  $\pm 2$  mm). In Fig. 3.2 is deze configuratie weergegeven.

Om ophoping van achtergrond-gas in de strooikamer tegen te gaan wordt aan de vacuumruimte gepompt met een olie-diffusiepomp (1700 l/s). Dit

levert een achtergronddruk van circa  $10^{-5}$  Torr in de buurt van het botsingsvolume. Om dezelfde reden wordt de bronkamer van de hoofdbundel differentiëel gepompt met een turbo-moleculair-pomp (110 l/s).

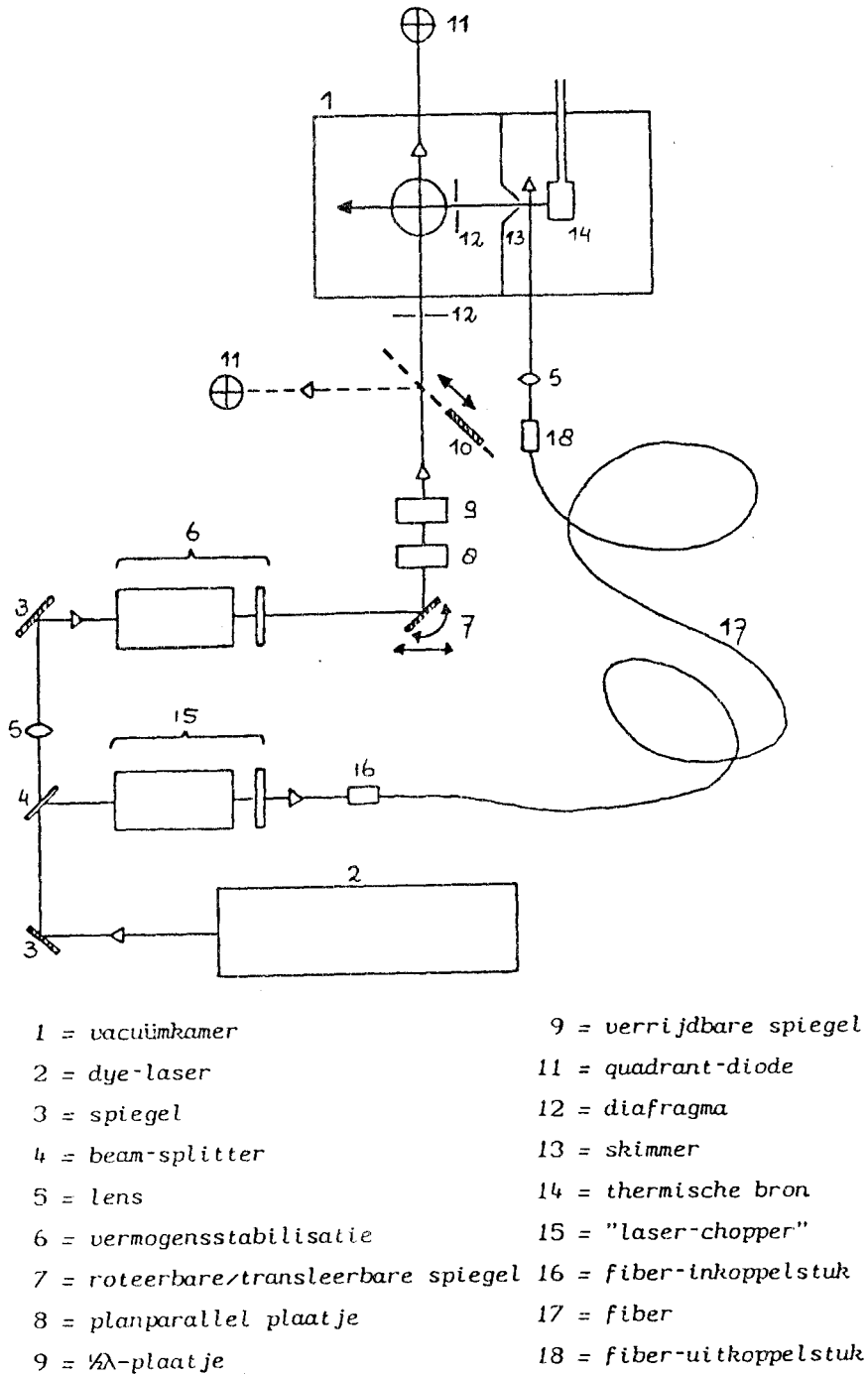


Fig.3.3. : Laser- en deeltjes-bundels in de Minibundel-1 opstelling.

## B. TOF-modulatieproces

Bij zogenaamde Time-Of-Flight- of looptijd-metingen in de Minibundel-1 opstelling (zie hoofdstuk 5) wordt een tweede, afgesplitste laserbundel via een fiber loodrecht op de hoofdbundel ingeschoten, en wel tussen de uitstroomopening van de thermische bron en de skimmer. De bundel heeft een vermogen van typisch 0.50 mW in de opstelling. Met behulp van een electro-optische modulator laat zich deze zogenaamde "chopper"-laserbundel zeer snel "aan" en "uit" zetten [HEI82, GER86]. Op die manier kunnen we de dichtheid van  $Ne^*$ -atomen in de hoofdbundel moduleren. De lichtweg van deze laserbundel is schematisch getekend in Fig. 3.3.

### 3.3.2. Optisch detectiesysteem

Het optisch systeem voor detectie van fluorescentiestraling is ontworpen aan de hand van de genoemde eisen van grote golflengteselectiviteit en hoge detectie-efficiency, vooral voor botsinggeïnduceerde fluorescentiestraling. Aan deze eisen is voldaan door gebruik te maken van smalbandige interferentiefilters, in combinatie met een parabolische spiegel.

Met behulp van de parabolische spiegel ( $f = 10.2$  mm) verkrijgen we een grote ruimtehoek-acceptantie van 40 %. De hoofd-, dwars- en laserbundel snijden elkaar nabij het brandpunt van deze spiegel, zodat de uitgezonden fluorescentiestraling als een nagenoeg evenwijdige bundel op de interferentiefilters valt. Dit is een voorwaarde voor een goede werking van deze filters [RUY84].

Met behulp van één of twee interferentiefilters (halfwaardebreedte  $FWHM \approx 2$  nm, piektransmissie  $T_{max} \approx 0.75$ , transmissie op 10 nm buiten de piek  $T_{10} < 10^{-6}$ ) wordt de fluorescentiestraling op golflengte geselecteerd. Enerzijds kunnen we hiermee de botsinggeïnduceerde fluorescentiestraling uitstekend filteren uit een oceaan van directe achtergrondstraling, anderzijds maken deze filters het mogelijk de verschillende fluorescentielijnen gescheiden te detecteren. De interferentiefilters hebben als nadeel dat de transmissie sterk afhankelijk is van de hoek waaronder de straling op het filter invalt ( $T < 0.1T_{max}$  voor invalshoeken  $> 6^\circ$ ). Voor een verdere onderdrukking van achtergrondstraling, vooral bestaande uit strooilicht van de laserbundel zelf, worden bovendien vaak roodglas-afkapfilters ("hoogdoorlaat"-filters) gebruikt.

Na de filters te zijn gepasseerd worden de fluorescentiefotonen door een asferische lens gefocuseerd op de kathode ( $\emptyset$  9 mm) van een roodgevoelige photomultiplierbuis (EMI-9862-K) in een watergekoeld huis. De quantum-efficiency van de photomultiplier is slechts van de orde  $\eta_{pm} \approx 10^{-2}$ . De totale detectie-efficiency voor botsinggeïnduceerde fluorescentiestraling  $\eta_l$  is dan ruwweg  $\eta_l \sim \mathcal{O}[10^{-3}]$ . Bij het meten van de vele ordes grotere directe fluorescentiestraling moet meestal een extra grijs-filter worden gebruikt (zwak-golflengteafhankelijke transmissie  $T \sim \mathcal{O}[10^{-3}]$  of  $T \sim \mathcal{O}[10^{-5}]$ ). Dit dient om een lineaire respons van de photomultiplier te garanderen.

Bij de calibratie van het optisch detectiesysteem, in het bijzonder die van de gebruikte filters staan we nog stil in paragraaf 3.5. De uit dit alles resulterende telsnelheden  $I_k$  en  $I_l$  van directe en botsinggeïnduceerde fluorescentiestraling zijn van de orde  $I_k \sim \mathcal{O}[10-100 \text{ kHz}]$  respectievelijk  $I_l \sim \mathcal{O}[0.5-10 \text{ kHz}]$ . De achtergrondstraling is typisch  $\mathcal{O}[5-10 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}]$ .

### 3.4. Meettechniek

#### 3.4.1. Meetroutine

In de Minibundel-1 opstelling willen we inelastische botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$  bepalen door meting van de directe en botsinggeïnduceerde fluorescentiesignalen  $I_l$  respectievelijk  $I_k$  (zie Vgl'n (3.3) en (3.4)). In het ideale geval zouden we daarbij voldoende hebben aan twee metingen met verschillende interferentiefilters. In de praktijk moeten we echter corrigeren voor achtergrondstraling. Al met al maken we bij de bepaling van de voor ons relevante signaalverhouding  $I_l/I_k$  gebruik van het volgende drietal modulatie-technieken :

1. Laser afstemmen op / verstemmen van de overgangsfrequentie  $\nu_{ik}$   
( notatie 1/0 )
2. Dwarsbundel aan / uit zetten ( notatie A/U )
3. Filters voor directe / botsinggeïnduceerde fluorescentie kiezen  
( notatie K/L )

Met modulatietechniek 1 wordt rechtstreeks het laser-excitatieproces  $Ne^* \{^3P_{0,2}\} \rightarrow Ne^{**} \{\alpha\}_k$  beïnvloed, zodat we de fluorescentiesignalen kunnen scheiden van de achtergrond. Als de laser eenvoudigweg aan en uit werd gezet, dan was geen correctie voor laserstrooilicht mogelijk. De laserfrequentie ligt voor een afgestemde laser binnen  $\pm 0.5$  MHz van de overgangsfrequentie  $\nu_{ik}$  en voor een verstemde laser op circa  $\nu_{ik} + 80$  MHz. Voor het optisch detectiesysteem maakt dit geen verschil. Met modulatietechniek 2 beïnvloeden we het botsingsproces van Vgl. (1.1), zodat de bijdrage van directe fluorescentiestraling aan het botsinggeïnduceerde signaal kan worden bepaald. Tevens geeft zij informatie omtrent de verzwakking van de hoofdbundel door de dwarsbundel. Modulatie-techniek 3 tenslotte maakt het mogelijk om beide types fluorescentiestraling gescheiden te detecteren.

Voor de signaalverhouding  $I_l/I_k$  kunnen we dan afleiden [RUY84] :

$$\frac{I_l}{I_k} = \frac{LA}{KA} - \frac{LU}{KU} = \frac{LA(1) - LA(0)}{KA(1) - KA(0)} - \frac{LU(1) - LU(0)}{KU(1) - KU(0)} \quad (3.7)$$

We hebben dus in totaal acht meetsignalen nodig voor de experimentele bepaling van  $I_l/I_k$ . Aangezien bijgevolg de toestand van het meetsysteem veelvuldig veranderd dient te worden, is een automatisering van het meetproces onontbeerlijk. Tijdens dit afstudeerwerk is aan dit aspect dan ook veel aandacht besteed, met als resultaat een volledig doorgevoerde automatisering van het experiment. Alle genoemde modulatie-technieken worden door een meetcomputer (M68000) gestuurd :

1. Verstemming van de laserfrequentie via communicatie met de regelcomputer voor de laser-stabilisatie [HOE86].
2. Aan en uit zetten van de dwarsbundel met elektronisch bediende pneumatische kleppen.
3. Verwisselen van de optische filters met behulp van een stappenmotor-gestuurde filterwisselaar voor 2x5 filters [VEU86].

In dit verband verdient ook de volledig geautomatiseerde uitlijning en positionering van de "excitatie"-laserbundel genoemd te worden.

Gevolg van dit alles is dat de effectieve meettijden met een factor 2-10 reduceerd zijn. Hierdoor zijn meer metingen binnen dezelfde tijd

mogelijk geworden, met alle gunstige gevolgen vanden (bijvoorbeeld wat betreft de nauwkeurigheid van de meetresultaten). In Tabel 3.1 zijn karakteristieke meettijden en meetsignalen vermeld. Ook of zelfs juist met dit groot scala aan experimentele mogelijkheden mogen we echter het belang van een goede meetstrategie niet uit het oog verliezen.

type signaal	meetijd [s]	fluorescentiesignalen [s <sup>-1</sup> ]			$\frac{I_l}{I_k}$
		signaal	achtergrond	deviatie	
KU	3	9000	20000	500	0.125 (0.003)
KA	6	40000	20000	200	
LU	3	100	10000	100	
LA	20	5000	10000	100	
KU	10	9000	2000	1000	0.010 (0.008)
KA	20	4000	2000	800	
LU	10	100	15000	200	
LA	50	4000	15000	200	

Tabel 3.1. : Karakteristieke meettijden en meetsignalen voor polarisatie-metingen aan een sterke en een zwakke overgang.

### 3.4.2. Meetstrategie

In het Minibundel-1 experiment bestuderen we het gedrag van de inelastische botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$  als functie van de kortlevende begintoestand  $Ne^{**}\{a\}_k$ , de eindtoestand  $Ne^{**}\{a\}_l$ , de botsingsenergie  $E_{cm} = \frac{1}{2} \mu g^2$ , de polarisatierichting  $\vec{E}_p$  van de laser en het soort dwarsbundelgas (He, Ne, H<sub>2</sub>, .....).

Uitgezonderd de keuze van de begintoestand  $Ne^{**}\{a\}_k$ , die wordt bepaald door de gekozen laser-frequentie  $\nu_{lk}$ , en de aard van het dwarsbundelgas kunnen al deze procesvariabelen tijdens de meting per computer gevarieerd



worden. Willen we de resultaten van afzonderlijke metingen nauwkeurig kunnen interpreteren, dan zullen we er in het algemeen verstandig aan doen om per meting slechts één procesvariabele te variëren. Immers, alleen op deze wijze kunnen we waargenomen effecten op het gedrag van de botsingsdoorsnede  $Q_{l \leftarrow k}$  eenduidig associëren met een bepaalde procesvariabele. Daarnaast brengt een variatie van meerdere variabelen tegelijk al snel met zich mee dat metingen zich over een lange tijd uitstrekken, hetgeen de invloed van driftverschijnselen sterk vergroot.

We onderscheiden dan ook een zestal verschillende types metingen, die alle in latere hoofdstukken nader aan de orde zullen komen :

1. **Polarisatiemeting** = meting van de verhouding  $I_l/I_k$  van botsinggeïnduceerde- en directe fluorescentiestraling, als functie van de polarisatie-richting  $\vec{E}_p$  van de laser (zie hoofdstuk 4).
2. **Ijkmeting** = meting van de verhouding  $I_l/I_k$  voor verschillende eindtoestanden  $Ne^{**}\{\alpha\}_l$  door verandering van interferentiefilter (zie hoofdstukken 4 en 5).
3. **Energiemeting** = meting van de signaalverhouding  $I_l/I_k$ , als functie van de relatieve snelheid  $\vec{g}$  van de hoofd- en dwarsbundel-deeltjes, door verplaatsing van het botsingsvolume langs de hoofdbundel-as (zie hoofdstuk 5, waar ook een andere methode van energie-variatie wordt besproken).
4. **Time-Of-Flight meting** = naar hoofdbundelsnelheid opgeloste meting van de signaalverhouding  $I_l/I_k$ , met behulp van later te beschrijven meettechnieken (zie hoofdstuk 6).

In dit rijtje wordt een aparte positie ingenomen door een meting die een belangrijke rol speelt bij de calibratie van het optisch detectiesysteem:

5. **K-polarisatiemeting** = meting van de directe fluorescentiesignalen KU of KA, als functie van de polarisatierichting  $\vec{E}_p$  van de laser (zie hoofdstuk 4).

Voor alle types van metingen geldt, dat we de invloeden van drift-in-de-tijd van de experimentele grootheden nooit geheel kunnen uitschakelen. Deze drift kunnen we echter minimaliseren door de metingen zich niet overal te lange tijd te laten uitstrekken (bijvoorbeeld maximaal 3 uur per meting van een bepaald type). Lineaire drift kunnen we elimineren door het meetproces symmetrisch in de tijd op te zetten. Bij polarisatiemetingen, bijvoorbeeld, worden bij een vaste laser-polarisatierichting de vier karakteristieke meetsignalen KU, KA, LU en LA gemeten in een rangorde KU-KA-LA-LU-LA-KA-KU. Daarbij wordt per afzonderlijke deelmeting afwisselend met laser aan en met laser uit gemeten om zo goed mogelijk voor de achtergrondstraling te corrigeren. Volgens hetzelfde principe variëren we de polarisatierichting  $\vec{E}_p$  van de laser tijdens een complete meetcyclus volgens bijvoorbeeld  $\vec{E}_p = -90, -60, -30, 0, 30, 60, 90, 75, 45, 15, -15, -45, -75^\circ$ .

### 3.5. Calibratie van het experiment

Vooraleer we absolute inelastische werkzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$  kunnen afleiden uit het experiment, dienen de fluorescentiesignalen  $I_k$  (uit Vgl. (3.3)) en  $I_l$  (uit Vgl. (3.4)) naar behoren gecalibreerd te worden. Uitgaande van bekende en/of modelmatige plaats- en snelheidsafhankelijkheden van de grootheden in deze vergelijkingen, worden de integralen voor  $I_k$  en  $I_l$  per computer berekend voor vaste deeltjesbundelsnelheden.

#### 3.5.1. Absolute botsingsdoorsnedes

Eerder hebben we vermeld dat uit de experimenteel bepaalde signaalverhouding  $I_l/I_k$  absolute botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$  bepaald kunnen worden. Hoe dat in zijn werk gaat zullen we in deze paragraaf toelichten. Aangezien we te maken hebben met deeltjesbundels met supersone snelheidsverdeling valt daarbij niet te ontkomen aan de introductie van een modelmatige snelheidsafhankelijkheid van  $Q_{l \leftarrow k}$  in het botsingsvolume. Gezien de beperkte afmetingen van het botsingsvolume gaat hiervan weinig

invloed uit. Schrijven we zonder verlies van algemeenheid  $Q_{l \leftarrow k}(g) = Q_{l \leftarrow k} * f_Q(g)$ , dan laten Vgl. (3.3) en (3.4) zich combineren tot

$$\frac{I_l}{I_k} = Q_{l \leftarrow k} \frac{\int \eta_l(\vec{r}) T_k(\vec{r}) n_k(\vec{r}) n_x(\vec{r}) g(\vec{r}) f_Q(g) d\vec{r}}{\int A_k \eta_k(\vec{r}) T_k(\vec{r}) n_k(\vec{r}) d\vec{r}} \quad (3.8)$$

Door uit te gaan van het quotiënt van directe en botsinggeïnduceerde signalen maken we de berekening van de absolute botsingsdoorsnede onafhankelijk van de hoofdbundelintensiteit, evenals van de absolute ijkfactoren in de optische detectie-efficiency's. Zo ook verdwijnt in eerste orde het effect van de hoofdbundelverzwakking door de dwarsbundel.

### 3.5.2. Signaal calibratie

In deze paragraaf geven we een toelichting op de afzonderlijke grootheden van Vgl. (3.8), in het kader van de calibratie van de experimentele fluorescentiesignalen  $I_k$  en  $I_l$ . Alle plaatsafhankelijke grootheden worden hierbij beschreven in het laboratorium-systeem, gedefinieerd aan de hand van de hoofd-, dwars- en laserbundel-assen, zoals reeds schematisch weergegeven werd in Fig. 3.1.

### **Excitatieprofiel $n_k(\vec{r})$**

De dichtheidsverdeling  $n_k(\vec{r})$  van kortlevende  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$ -atomen in het botsingsvolume wordt in een twee-dimensionale benadering numeriek berekend. We beschrijven het excitatieproces hierbij in een vlak loodrecht op de richting van de laserbundel. Daarbij gaan we uit van een gaussisch stralingsveld en verwaarlozen we de divergentie van de hoofdbundel ( $< 2^\circ$  door diafragma's in de bundellijn) en van de laserbundel ( $< 1$  mrad door afbeelding van de waist op het botsingsvolume). Ook de invloed van een eventueel aanwezig magneetveld op het excitatieproces laten we voorlopig even buiten beschouwing (zie paragraaf 4.1).

De numerieke berekening komt neer op het oplossen van de zogenaamde "rate-equations", een gekoppeld stelsel differentiaalvergelijkingen voor de bezettingsgraden van de  $Ne^{**}\{\alpha\} - Ne^{*}\{(2p)^5(3s)\}$  toestanden. Hierbij blijkt

dat de kortlevende  $\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_k$ -atomen gevormd worden in een betrekkelijk klein gebied (breedte  $\Delta x \approx 0.5$  mm). Fig. 3.4 geeft hiervan een beeld. (Voor het  $\text{Ne}^*\{^3P_{0,2}\} \leftrightarrow \text{Ne}^{**}\{\alpha\}_g$  twee-niveau systeem zouden we bij wijze van uitzondering een over het gehele laserprofiel uitgesmeerde  $n_k(\vec{r})$  verdeling krijgen.)

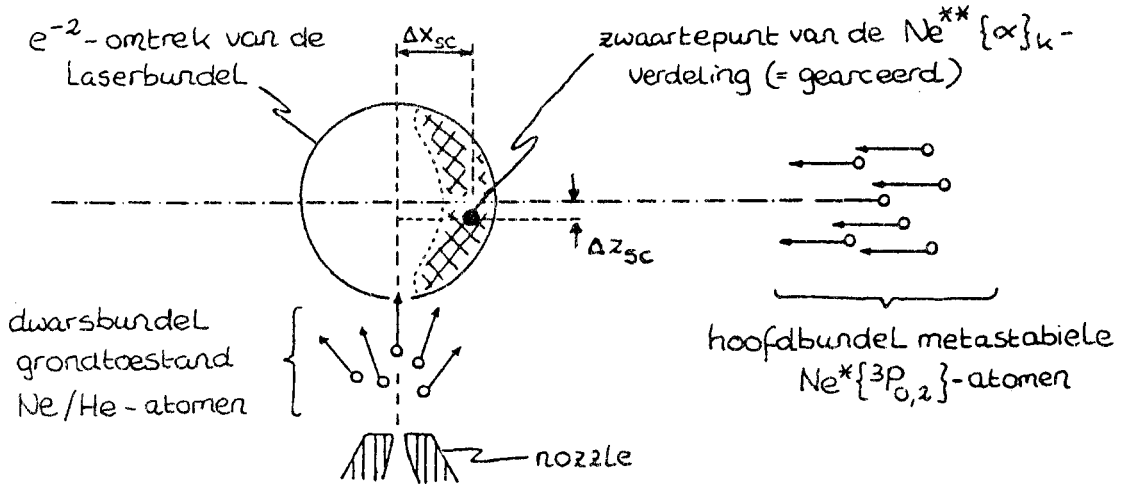


Fig.3.4. : Twee-dimensionaal beeld van de bezetting van de laser-geexciteerde kortlevende  $\{\alpha\}_k$  toestand binnen het laserbundel-profiel.

### Dwarsbundeldichtheid $n_X(\vec{r})$

De dwarsbundel wordt in ons experiment gevormd door een vrije supersone expansie uit een nozzle. Voor de dichtheid  $n_X(\vec{r})$  van de dwarsbundel-deeltjes geldt [BEY81] :

$$n_X(x,y,z) = a^2 n_{X,0} R_n^2 \frac{z^5}{(x^2 + y^2 + z^2)^{5/2}} \quad (3.10)$$

met  $a = 0.806$ ,  $n_{X,0}$  de dwarsbundel reservoir-dichtheid en  $R_n$  de nozzle-straal.

### Hoofdbundel transmissie $T_k(\vec{r})$

De plaatsafhankelijke verzwakking  $T_k(\vec{r})$  van de hoofdbundel ten gevolge van elastische botsingen van hoofdbundel-deeltjes met dwarsbundel-deeltjes wordt, onder verwaarlozing van de  $Y$ -afhankelijkheid, berekend als [RUY84] :

$$T_k(\vec{r}) = \exp \left\{ - \int_{-\infty}^x n_X(x', z|y=0) Q_{\text{elas}} \frac{g(x', z|y=0)}{v_{\text{Ne}^*}} dx' \right\} \quad (3.11)$$

Deze integraal heeft een analytische oplossing [BEU85]. Een redelijke waarde voor de elastische botsingsdoorsnede blijkt  $Q_{\text{el}} \approx 100 \text{ \AA}^2$ .

### Detectie-efficiency $\eta$

De totale efficiency  $\eta$  voor detectie van fluorescentiefotonen met behulp van het beschreven optisch detectiesysteem kent een aantal bijdragen :

- $\eta_{\text{opt}}$  : Golflengteafhankelijkheid van de optische elementen.
- $\eta_{\Omega}$  : Afhangelijkheid van de plaats van waaruit de straling geëmitteerd wordt.
- $\eta_g$  : Afhangelijkheid van de richting waarin de straling uitgezonden wordt.
- $\eta_{\text{pol}}$  : Polarisatieafhankelijkheid van de uitgezonden straling.

We gaan voorlopig uit van isotroop geëmitteerde, ongepolariseerde fluorescentiestraling (in paragraaf 4. bespreken de invloed van anisotrope gepolariseerde stralingsverdelingen). Zowel de directe als de botsing-geïnduceerde fluorescentiestraling detecteren we op slechts één  $\text{Ne}^{**} \{ \alpha \}_j \rightarrow \text{Ne}^* \{ (2p)^5 (3s) \}_i$ -overgangsgolflengte, zodat we voor de totale detectie-efficiency's kunnen schrijven :

$$\eta_j(\lambda, \vec{r}) = \frac{A_{ji}}{A_j} \eta_{\text{opt},j}(\lambda_{ji}) \eta_{\Omega,j}(\vec{r}) \quad j = k, l \quad (3.12)$$

Met behulp van een computerprogramma wordt de plaatsafhankelijkheid  $\eta_{\Omega}(\vec{r})$  van de detectie-efficiency numeriek berekend aan de hand van de geometrie van het Minibundel-apparaat en de bekende transmissie- en reflectie-karakteristieken van de optische elementen en filters [RUY84]. De golflengteafhankelijkheden  $\eta_{\text{opt}}(\lambda)$  zijn voor alle belangrijke optische componenten bepaald door ijking [RUY84-2].

Uit de voorgaande punten blijkt dat de ligging van het zwaartepunt van het fluorescentiestraling-uitzendend deel van het botsingsvolume bepaald wordt door een drietal grootheden. Dat zijn de dichtheidsverdelingen  $n_k(r)$  van  $\text{Ne}^{**}\{a\}_k$ -atomen en  $n_X(\vec{r})$  van dwarsbundel-deeltjes, en de totale detectie-efficiency  $\eta_l(\vec{r})$ .

### Einsteincoëfficiënten A

Voor de waarden van de Einsteincoëfficiënten  $A_k$  en  $A_l$  kozen we de standaard van Hartmetz & Schmorantzer [HAR83], anders dan vroeger toen de oudere gegevens van het National Bureau of Standards [NBS66] werden gebruikt. De vertakkingsverhoudingen  $A_{kj}/A_k$  blijken vaak aanzienlijk verschillende waarden op te leveren (tot  $\pm 20\%$ ).

### Relatieve snelheid $\vec{g}(\vec{r})$

De relatieve snelheid  $\vec{g}$  van de hoofd- en dwarsbundel-deeltjes laten we volgen uit de desbetreffende over de snelheidsverdelingen gemiddelde bundelsnelheden. Wat betreft de hoofdbundel wordt deze experimenteel bepaald uit looptijdmetingen (zie hoofdstuk 6). Voor de dwarsbundel hanteren we de volgende uitdrukking uit [BEY81] :

$$v_X = \sqrt{\gamma/(\gamma-1)} \cdot v_o \quad (3.13)$$

$$v_o = \sqrt{2KT_o/m}$$

Hierin is  $T_o$  de temperatuur van het dwarsbundel-gas in het reservoir en  $\gamma = c_p/c_v$  de verhouding van de soortelijke warmten ( $\gamma = 5/3$  voor atomaire gassen).

Aangezien de relatieve snelheid  $\vec{g} = \vec{v}_{\text{Ne}^{**}} - \vec{v}_X$  bepaald wordt door het vectoriële verschil van hoofd- en dwarsbundelsnelheden is hij, zowel in grootte als in richting, afhankelijk van de positie van het botsingsvolume.

### Werkzame doorsnede $Q(g)$

Voor de berekening van de inelastische werkzame doorsnede  $Q_{l \leftarrow k}$  voor het  $\text{Ne}^{**}-X$  botsingsproces gebruiken we als input een modelfunctie  $f_Q(g)$  die de

snelheidsafhankelijkheid van  $Q_{l \leftarrow k}(g)$  in rekening brengt. Deze model-functies hebben we afgeleid uit eerdere experimenten in de Minibundel-1 opstelling [DRI85, VRE86].

Voor het systeem  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$  lijkt, voor massamiddelpuntsenergieën ver boven de drempelenergie van de betrokken botsinggeïnduceerde overgang, een goede benadering (zie hoofdstuk 5):

$$Q_{l \leftarrow k}^{\text{Ne}^{**}\text{-He}}(g) = Q_{l \leftarrow k}^{\text{Ne}^{**}\text{-He}}(g_{sc}) \frac{g(\vec{r})}{g_{sc}} \quad (3.14)$$

waarbij  $Q_{l \leftarrow k}$  de over het botsingsvolume gemiddelde botsingsdoorsnede en  $\langle g \rangle$  de gemiddelde relatieve snelheid van de  $\text{Ne}^{**}$ - en He-atomen.

Voor het systeem  $\text{Ne}^{**}\text{-Ne}$  gaven deze experimenten aanleiding tot de keuze

$$Q_{l \leftarrow k}^{\text{Ne}^{**}\text{-Ne}}(g) = Q_{l \leftarrow k}^{\text{Ne}^{**}\text{-Ne}}(g_{sc}) \frac{g(\vec{r})}{g_{sc}^2} \quad (3.15)$$

In een later stadium kan misschien een semiklassieke simulatie van de snelheidsafhankelijkheid, als beschreven in hoofdstuk 2, worden gebruikt.

### 3.5.3. Uitlijning

De compacte opzet van het Minibundel-1 experiment vereist een nauwkeurige uitlijning van hoofd-, dwars- en laserbundel ten opzichte van elkaar. We zagen namelijk dat vele grootheden die de gemeten werkzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$  van het botsingsproces van Vgl. (1.1) mede bepalen, in meer of mindere mate plaatsafhankelijk zijn. De ligging van het botsingsvolume, gedefinieerd door het snijvolume ( $\Delta V \approx 1 \text{ mm}^3$ ) van de hoofdbundel en de "excitatie"-laserbundel, dient daarom nauwkeurig bekend te zijn.

De hoofdbundel werd eenmalig uitgelijnd ten opzichte van de nozzle van de dwarsbundel en de parabolische spiegel van het optische systeem. Deze bundellijn wordt gefixeerd door de skimmer en een bundeldiafragma. De laserbundel staat geheel los van het Minibundel-apparaat en moet desalniettemin op een vaste, reproduceerbare plaats de hoofdbundel loodrecht kruisen. Om de uitlijning van deze laserbundel sneller en nauwkeuriger te laten verlopen werd dit veelvuldig te herhalen proces geheel geautomatiseerd.

De bundellijn van de laser wordt volledig vastgelegd door twee punten in de ruimte te fixeren. Dit gebeurt met een tweetal quadrantdiodes, geplaatst vóór en achter de opstelling (zoals Fig. 3.4 laat zien). Een quadrantdiode is een ronde plak lichtgevoelig materiaal die in vier gelijke, elektrisch gescheiden quadranten is verdeeld. Hij levert per quadrant een signaalstroom die evenredig is met de hoeveelheid opvallend licht (tot  $\pm 10 \text{ mW/mm}^2$ ). Uit de verschilsignalen van de vier quadranten kan de positie van een laserbundel die op de quadrantdiode valt, worden bepaald. Dit wordt toegelicht in Fig. 3.5.

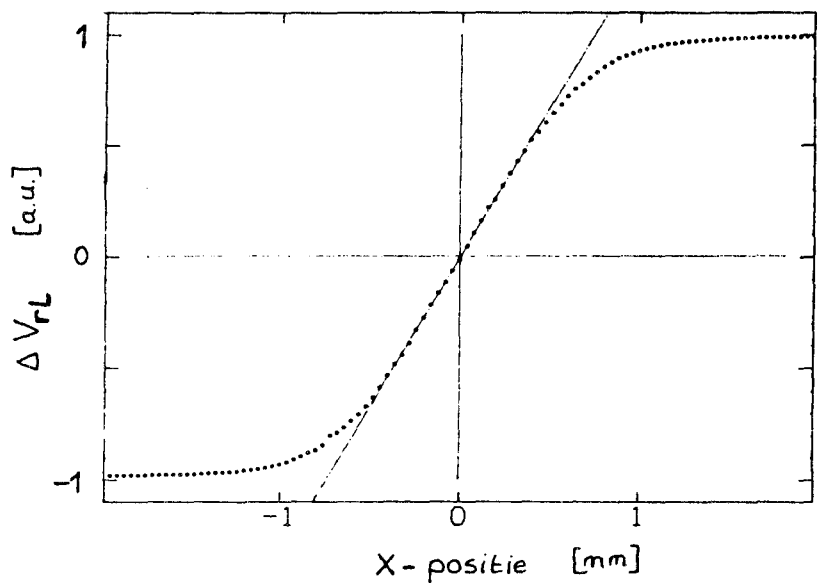
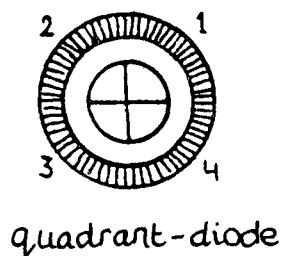


Fig.3.5. : Het "rechts-links" verschil-signaal  $\Delta V_{rl} = (V_1+V_2)-(V_3+V_4)$  van een gaussische laserbundel ( $\emptyset 1.3 \text{ mm } (1/e^2)$ ) die beweegt langs de horizontale quadrant-scheidingslijn.

De lichtweg van de laserbundel door de opstelling kan door de meetcomputer veranderd worden via een aantal stappenmotor-gestuurde optische elementen [KRA86]. Op deze manier kunnen we de laserbundel zeer nauwkeurig (tot op  $\pm 0.02 \text{ mm}$ ) op het centrum van de beide quadrantdiodes richten, waarmee de éénmalig vastgelegde bundellijn goed gereproduceerd kan worden.



#### 4. POLARISATIEEFFECTEN IN BOTSINGSDOORSNEDES

De werkzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$  voor botsinggeïnduceerde overgangen binnen het kortlevende  $Ne^{**}$ -multiplet vertonen oriëntatie- of polarisatie-effecten. Het verloop van het botsingsproces wordt in sterke mate bepaald door de oriëntatie van het elektronisch impulsmoment  $\vec{J}_k$  van het oorspronkelijke  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$ -atoom ten opzichte van de asymptotische internucleaire as.

In het experiment kunnen we gepolariseerde botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{|M_k|}$  bepalen, met  $M_k$  de projectie van  $\vec{J}_k$  langs de asymptotische relatieve snelheid van de botsende deeltjes (de ruimtevast z-as). Daartoe dienen we een gepolariseerde laserbundel te gebruiken voor de excitatie van de kortlevende  $\{\alpha\}_k$ -atomen. Uit quantummechanische en semiklassieke berekeningen, die uitgaan van de wisselwerkingspotentialen waarover we beschikken, volgen ook polarisatie-effecten. Vergelijking van theorie en experiment geeft gedetailleerde informatie omtrent deze potentialen alsmede over de botsingsdynamica.

##### 4.1. Gepolariseerde $Ne^{**}\{\alpha\}_k$ -atomen

De kortlevende  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$ -atomen worden in ons experiment met behulp van een lineair gepolariseerde laser geëxciteerd vanuit een van de metastabiele  $Ne^*\{^3P_{0,2}\}$ -toestanden. Voor de ongepolariseerde metastabiele ondertoestand zijn alle magnetische subniveau's gelijk bezet. Aangezien echter het gepolariseerde laserveld ( $L = 1, M = 0$ ) alleen overgangen mogelijk maakt tussen subniveau's met dezelfde waarde van het magnetisch quantumgetal  $m$  ( $\Delta J = \pm 1, 0; \Delta m = 0$ ), is de kortlevende boventoestand in het algemeen gepolariseerd. In dit verband is verder van belang dat de pomp- of absorptie-waarschijnlijkheid  $f_i$  voor elk subniveau  $|^3P_{0,2} J_i m_i\rangle$  verschillend is, zodat de  $|\alpha_k J_k m_k\rangle$  subtoestanden met verschillende snelheden bevolkt worden (zie Fig. 4.1). De pompwaarschijnlijkheid  $f_i$  is volgens het Wigner-Eckart theorema in het algemeen (dus ook voor circulair gepolariseerd licht met  $M = \pm 1$ ) evenredig met het kwadraat van de Clebsch-Gordan coëfficiënt  $(J_i m_i L=1 M | J_k m_k)$ .

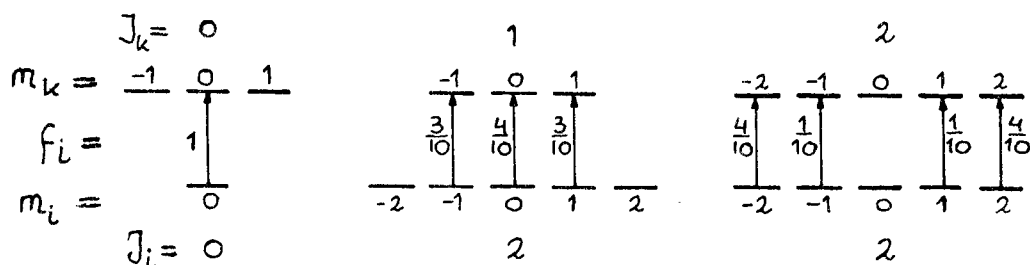


Fig. 4.1. : Optische overgangen tussen magnetische subtoestanden bij excitatie met lineair gepolariseerd laserlicht. Bij elke overgang is de overgangswaarschijnlijkheid  $f_i$  aangegeven.

De bezettingsgraden  $G_r^{m_r}$  van de subniveau's  $|\alpha_r J_r m_r\rangle$  kunnen we berekenen (als functie van de tijd) door de geldende "rate-equations" op te stellen. In ons experiment zijn hierbij twee zaken van belang :

- Gezien de lange verblijftijd van de metastabiele  $\text{Ne}^*\{^3P_{0,2}\}$ -atomen in het laserveld ( $\pm 500$  ns) zullen de totale geïntegreerde bezettingsgraden  $G_r^{m_r}$  niet uitsluitend bepaald worden door de pompwaarschijnlijkheid  $f_{ik}$  naar het  $|\alpha_r J_r m_r\rangle$ -subniveau.
- Onder invloed van een magneetveld (aardmagneetveld!) zal de bezetting van de magnetische subtoestanden veranderen tijdens het verblijf van de atomen in het laserveld. Het elektronisch impulsmoment  $\vec{J}$  gaat precederen om de richting van het magneetveld  $\vec{B}$  (Larmor-precessie). Gelet op de korte levensduur van de  $\text{Ne}^{**}$ -atomen speelt dit alleen een rol voor de metastabiele  $\text{Ne}^*\{^3P_2\}$ -atomen. Sinds kort beschikken we over de mogelijkheid om de genoemde rate-equations numeriek op te lossen, daarbij rekening houdend met de aanwezigheid van een magneetveld [SEN87].

#### 4.2. Gepolariseerde Werkzame Doorsnedes

Experimenteel gemeten totale werkzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{\text{exp}}$  bestaan uit een incoherente som van enkel-gepolariseerde doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{|M_k|}$  gewogen met de bezetting van de magnetische subtoestanden  $|\alpha_r J_r M_r\rangle$  van het kortlevende  $\text{Ne}^{**}$ -aatom ten opzichte van de asymptotische relatieve snelheid  $\vec{g}$  van de hoofd- en dwarsbundel-deeltjes.

De  $\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_k$ -atomen worden met behulp van een lineair gepolariseerde laser geprepareerd in magnetische subtoestanden  $|\alpha_k J_k m_k\rangle$  ten opzichte van laserpolarisatie  $\vec{E}_p$ , en wel met bezettingsgraden  $G_k^{m_k}$ . Driessen [DRI85] leidde met het draaimatrixformalisme voor de resulterende experimentele doorsnede af, dat:

$$Q_{l \leftarrow k}^{\text{exp}}(\beta) = \sum_{m_k = -J_k}^{m_k} G_k^{m_k} \sum_{M_k = -J_k}^{M_k} g_k^{m_k M_k}(\beta) Q_{l \leftarrow k}^{M_k} \quad (4.1)$$

met  $\beta$  de hoek die de laserpolarisatie  $\vec{E}_p$  maakt met de relatieve snelheid  $\vec{g}$ , en  $g_k^{m_k M_k}(\beta) = \{d_{m_k M_k}^{(J_k)}(\beta)\}^2$ . De rotatiematrices of gereduceerde Wigner-D functies  $d$  beschrijven de invloed van de draaiing van de kwantisatie-as over een hoek  $\beta$  in het X-Z vlak. We maken in ons experiment geen onderscheid naar de magnetische subtoestanden van de  $\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_l$ -atomen, noch naar de richting van de deeltjes na de botsing!

De ongepolariseerde doorsnede  $Q_{l \leftarrow k}$  is bij gelijke bezetting van de magnetische subtoestanden  $|\alpha_k J_k M_k\rangle$  natuurlijk onafhankelijk van  $\beta$ :

$$Q_{l \leftarrow k}^{\text{on}} = \frac{1}{2J_k + 1} \sum_{M_k = -J_k}^{M_k} Q_{l \leftarrow k}^{M_k} \quad (4.2)$$

In de praktijk onderscheiden we voor het  $\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_{4,5,6,7}$ -multiplet twee situaties, afhankelijk van de impulsmoment-quantumgetallen  $J_i$  en  $J_k$  van respectievelijk de metastabiele  $\text{Ne}^* |^3P_{J_i} J_i\rangle$ -toestand en de kortlevende  $\text{Ne}^{**} |\alpha_k J_k\rangle$ -begintoestand:

### 1. $J_k=1; J_i=0,2$

De werkzame doorsnede  $Q_{l \leftarrow k}^{\text{exp}}$  voor botsinggeïnduceerde overgangen vanuit deze  $\text{Ne}^{**}$ -toestanden (bijvoorbeeld  $\{\alpha\}_5$  en  $\{\alpha\}_7$ ) wordt uitgedrukt in de bezettingsgraden  $G_k^{m_k}$  van magnetische subniveaus  $|\alpha_k J_k M_k\rangle$  conform Vgl. (4.1):

$$Q_{l \leftarrow k}^{\text{exp}}(\beta) = \frac{1}{2} \left\{ \left( \frac{|0\rangle}{g_k} + \frac{|1\rangle}{g_k} \right) Q_{l \leftarrow k}^{|0\rangle}(\beta) + \left( \frac{|0\rangle}{g_k} + \frac{|1\rangle}{g_k} \right) Q_{l \leftarrow k}^{|1\rangle} \right\} + \quad (4.3)$$

$$+ \frac{1}{2} \left\{ \left( \frac{|0\rangle}{g_k} - \frac{|1\rangle}{g_k} \right) Q_{l \leftarrow k}^{|0\rangle}(\beta) + \left( -\frac{|0\rangle}{g_k} + \frac{|1\rangle}{g_k} \right) Q_{l \leftarrow k}^{|1\rangle} \right\} \cos 2\beta$$

Bij excitatie vanuit de  $\text{Ne}^*\{^3P_0\}$ -toestand ( $J_i = 0$ ) wordt alleen het magnetisch subniveau  $m_k = 0$  bevolkt:  $G_k^0 = 1$ ,  $G_k^1 = G_k^{-1} = 0$ . De polarisatie-afhankelijkheid voor  $Q_{l \leftarrow k}^{\text{exp}}$  wordt hiermee

$$Q_{l \leftarrow k}^{\text{exp}}(\beta) = \frac{1}{2} ( Q_{l \leftarrow k}^{|0\rangle} + Q_{l \leftarrow k}^{|1\rangle} ) + \frac{1}{2} ( Q_{l \leftarrow k}^{|0\rangle} - Q_{l \leftarrow k}^{|1\rangle} ) \cos 2\beta \quad (4.4)$$

Daarentegen leidt bij excitatie vanuit de  $\text{Ne}^*\{^3P_2\}$  toestand ( $J_i = 2$ ) de aangestipte numerieke oplossing van de rate-equations tot een gelijke bezetting van alle subniveaus  $|\alpha_k J_k M_k\rangle$  (zelfs bij aanwezigheid van zwakke magneetvelden):  $G_k^{m_k} \approx 1/(2J_k + 1)$ . De botsingsdoorsnede voor deze overgangen vertoont dan ook geen oriëntatie-effecten, zoals volgt uit Vgl. (4.3).

## 2. $J_k=2$ ; $J_i=2$

Deze  $\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_k$  toestanden kunnen alleen vanuit het metastabiele  $\text{Ne}^*\{^3P_2\}$  niveau geëxciteerd worden. Voor de botsingsdoorsnede  $Q_{l \leftarrow k}^{\text{exp}}$  leiden we in dat geval af:

$$\begin{aligned} Q_{l \leftarrow k}^{\text{exp}} = & \frac{1}{64} \left\{ [(22g^0 + 24g^1 + 18g^2)Q^0 + (24g^0 + 64g^1 + 40g^2)Q^1 + (18g^0 + 40g^1 + 70g^2)Q^2] \right. \\ & + [(24g^0 - 24g^2)Q^0 + (-24g^0 + 32g^1 + 32g^2)Q^1 + (-24g^0 - 32g^1 + 56g^2)Q^2] \cos 2\beta \\ & \left. + [(18g^0 - 24g^1 + 6g^2)Q^0 + (32g^1 - 8g^2)Q^1 + (6g^0 - 48g^1 + 2g^2)Q^2] \cos 4\beta \right\} \end{aligned} \quad (4.5)$$

Oplossing van de rate-equations voor dit systeem leidt in onze experimentele situatie tot een bezettingsverdeling  $G_k^{-2} = G_k^2 = 2/6$ ,  $G_k^{-1} = G_k^1 = 1/6$ ,  $G_k^0 = 0$  voor de  $\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_k$ -atomen in het botsingsvolume. De verblijftijd van  $\text{Ne}^*\{^3P_2\}$ -atomen in de laserbundel ( $\pm 400$  ns) is zo lang dat zich vanuit de aanvankelijke Clebsch-Gordan verdeling een meer isotrope verdeling instelt. De  $m_k = 0$  subtoestand blijft onbezet doordat de overgang  $\Delta J = 0$ ,  $\Delta m = 0$  verboden is. De invloed van een magneetveld op de bezetting van de magnetische subniveaus blijkt gering. Opmenging van de  $|\alpha_k J_k M_k\rangle$  subniveaus is

vanwege de korte levensduur van 20 ns verwaarloosbaar. Opmenging van  $|^3P_{0,2} J_i m_i\rangle$  subtoestanden blijft voor  $B = 0.5$  Gauss (aardveld!) beperkt tot maximaal 5%. Bij de bespreking van de meetresultaten komen we nog terug op de kwestie van bezettingsgraden.

#### 4.3 Gepolariseerde straling

Bij een gegeven anisotrope bevolking van de kortlevende  $\{\alpha\}_k$ -toestanden zal de fluorescentiestraling die geëmitteerd wordt bij het verval van deze toestanden naar een toestand uit het  $Ne^*\{(2p)^5(3s)\}$ -multiplet in het algemeen ook gepolariseerd zijn. In ons experiment, waar de  $Ne^{**}\{\alpha\}_l$ -atomen in alle richtingen verstrooid worden, kunnen we aannemen dat de botsinggeïnduceerde fluorescentie voornamelijk ongepolariseerd zal zijn. Voor de directe fluorescentie van de  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$ -atomen is dit niet het geval.

Bij het spontaan verval  $Ne^{**}\{\alpha\}_k \rightarrow Ne^*\{(2p)^5(3s)\}_i$  wordt dipoolstraling geëmitteerd, behorende bij de quantumgetallen  $L = 1$  en  $M = m_k - m_i$ , volgens een hoekverdelingsfunctie  $F_L^M(\phi)$ . De richting  $\phi$  is gedefinieerd ten opzichte van de laser-quantisatieas  $\vec{E}_p$ . De totale hoekverdeling  $I(\phi)$  van uitgezonden directe fluorescentiestraling wordt dus gegeven door :

$$I(\phi) \approx \sum_{M_k=-J_k}^{J_k} G_k^{M_k} \sum_{M_i=-J_i}^{J_i} (J_i m_i LM | J_k m_k)^2 F_L^M(\phi) \quad (4.6)$$

Voor dipoolstraling geldt:

$$F_1^0(\phi) = \frac{3}{2} \sin^2 \phi \quad (4.7)$$

$$F_1^{\pm 1}(\phi) = \frac{3}{4} (1 + \cos^2 \phi)$$

In Fig. 4.2 zijn deze hoekverdelingsfuncties weergegeven. Met de uit de literatuur bekende waarden voor de Clebsch-Gordan coëfficiënten voor  $L = 1$  kunnen we uit Vgl. (4.1) de stralingsverdeling  $I(\phi)$  berekenen.

In het gekruiste-bundel apparaat detecteren we de fluorescentiestraling met een ruimtehoek-acceptantie  $\Omega < 4\pi$ . Bij de berekening van de totale detectie-efficiency  $\eta$  moet daarom naast de plaats- en golflengte-

afhankelijke transmissie van de optische componenten ook de hoekverdeling van directe fluorescentie worden meegenomen. Hiermee wordt  $\eta_k$  afhankelijk van de laserpolarisatie-richting  $\vec{E}_p$ .

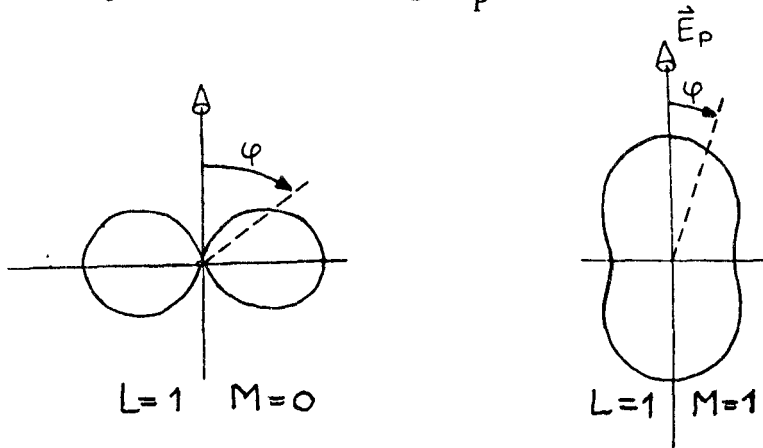


Fig.4.2. : De hoekverdelingsfuncties voor dipoolstraling (zie Vgl.4.7).

Experimenteel vinden we zowel de invloed van een anisotrope bezetting van de magnetische subniveau's van de  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$ -toestand als de polarisatie-afhankelijkheid van het optisch detectiesysteem terug in de directe fluorescentiesignalen  $I_k$ . In Fig. 4.3 wordt de polarisatie-afhankelijkheid van de gemeten KU-signalen (directe fluorescentie bij afwezigheid van de dwarsbundel) vergeleken met de berekende polarisatieafhankelijkheid van  $\eta_k$ . Deze berekende detectie-efficiëncy  $\eta_k$  kunnen we als functie van de richting  $\vartheta$  van de laser-polarisatie schrijven als  $\eta_k(\vartheta) = A \cos(2\vartheta - \epsilon)$ . De amplitude A en de fase  $\epsilon$  blijken af te hangen van de positie  $x_{sc}$  van het botsingsvolume. Op de symmetrie-as van de opstelling is  $\epsilon = 0$ .

Voor de  $Ne^{**}\{\alpha\}_5$ -toestanden met  $J_5=1$  vinden we bij excitatie vanuit  $Ne^*(^3P_0)$  een goede overeenstemming tussen de polarisatie-afhankelijkheden  $KU(\vartheta)$  en  $\eta_k(\vartheta)$ , wanneer we uitgaan van de theoretische 0:1:0 bezetting van de  $m_k = -1,0,1$  subtoestanden. Ook de plaatsafhankelijkheden voor de amplitude A en de fase  $\epsilon$  worden in dit geval goed beschreven.

Bij excitatie van  $Ne^{**}\{\alpha\}_7$ -toestanden met eveneens  $J_7=1$  vanuit  $Ne^*(^3P_2)$  correspondeert het waargenomen fluorescentie-patroon inderdaad met de theoretische 1:1:1 bezetting van de  $m_k = -1,0,1$  subtoestanden.

Voor het verval van de  $Ne^{**}\{\alpha\}_6$ -toestand na excitatie vanuit  $Ne^*(^3P_2)$  is overeenstemming moeilijker te verwezenlijken. De fluorescentiestraling lijkt een  $\cos(4\vartheta)$ -afhankelijkheid te vertonen, die niet door de berekeningen met een bezettingsgraad-verhouding 2:1:0:1:2 wordt gereproduceerd. Wel is de amplitude goed getroffen.

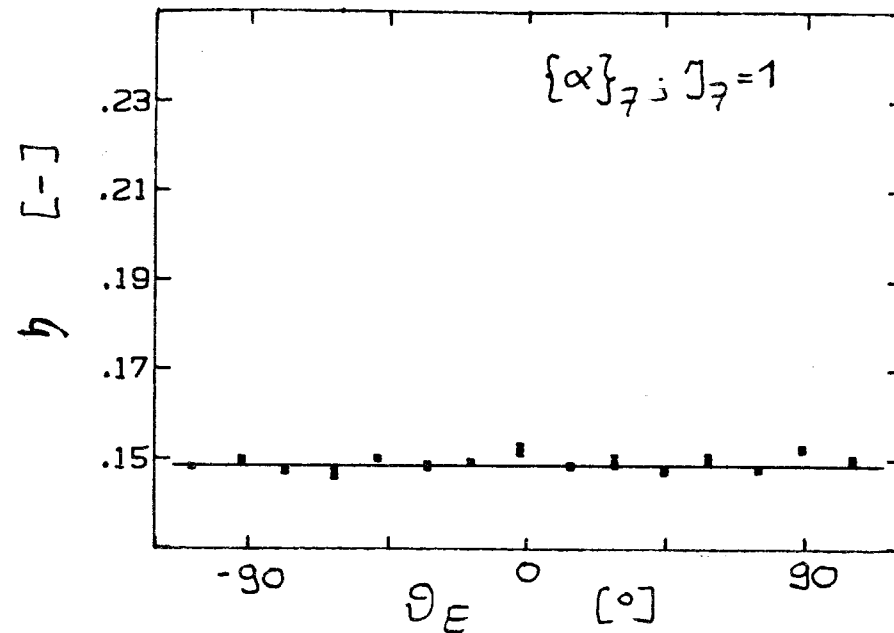
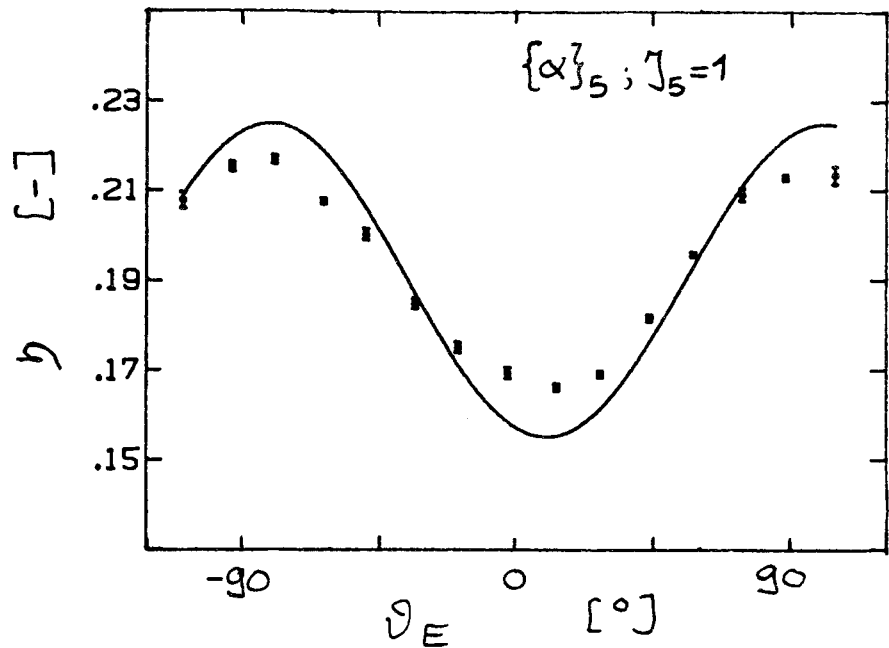
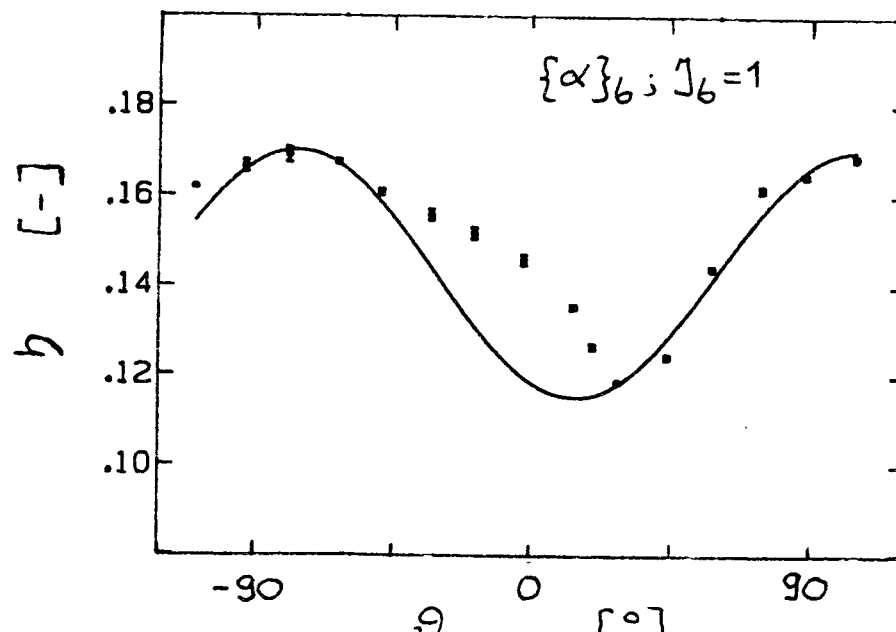


Fig.4.3. : Directe fluorescentiesignalen van de  $(\psi\alpha)_5; J_7=1$ ,  $(\psi\alpha)_7; J_7=1$  en  $(\psi\alpha)_6; J_6=2$  toestanden, bij excitatie met lineair gepolariseerd laserlicht vanuit respectievelijk de metastabiele  $^3P_0$ ,  $^3P_2$  en  $^3P_2$  toestanden. De getekende curves volgen uit de berekende detectieefficiency en de aangenomen verdelingen over de magnetische subtoestanden (0:1:0, 1:1:1 en 2:1:0:1:2).



Bij de bepaling van experimentele absolute botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$  moeten we de signaalverhouding  $I_l/I_k$  normeren op de totale hoeveelheid uitgezonden directe fluorescentiestraling. De polarisatieafhankelijke directe signalen KU en KA corrigeren we daartoe tot constante gemiddelde waarden. Deze signalen zouden worden gedetecteerd bij isotrope emissie van straling.

#### 4.4. Experimentele positiebepaling

Voor de omrekening van de gemeten verhouding  $I_l/I_k$  van botsinggeïnduceerde en directe fluorescentiestraling tot absolute botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$  (zie paragraaf 3.5) dient de ligging van het botsingsvolume nauwkeurig bekend te zijn. Naast de uitlijning op de quadrantdiodes hebben we ook de experimentele signalen zelf als controle hierop. Dit wordt toegelicht aan de hand van Fig. 4.4.

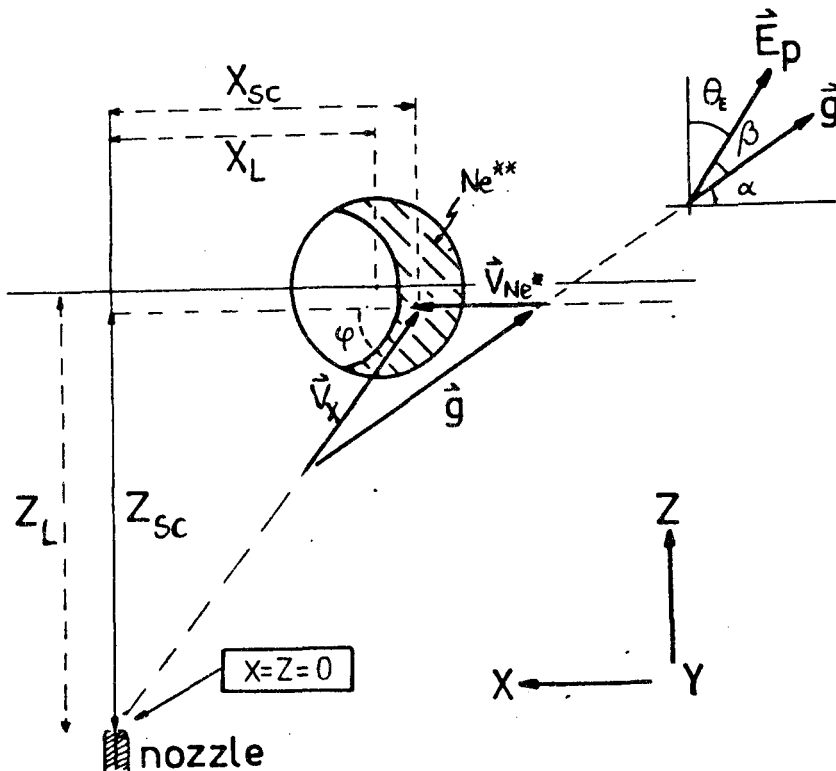


Fig.4.4. : Geometrie van het botsingsproces. De gebruikte symbolen zijn gedefinieerd in de tekst.



Het zwaartepunt  $(x_{sc}, z_{sc})$  van de ruimtelijke verdeling van botsing-geïnduceerde  $Ne^{**}\{\alpha\}_l$  atomen valt niet samen met het zwaartepunt  $(x_L, z_L)$  van de laserbundel. Afgezien van het proces van de vorming van  $Ne^{**}\{\alpha\}_l$ -atomen door laser-excitatie, dat resulteert in een stroomopwaartse verschuiving, speelt met name de dichtheidsverdeling van de dwarsbundel-deeltjes een rol. De verschuiving  $z_{sc} - z_L \approx 0.05$  mm blijkt over een groot gebied van  $x$ -waarden constant, terwijl de verschuiving  $x_{sc} - x_L$  numeriek wordt berekend op  $0.15 \leq x_{sc} - x_L \leq 0.35$ , afhankelijk van de gekozen overgang en de positie  $x_L$ .

Uit het Newton-diagram van Fig.4.4 kunnen we relaties afleiden voor de hoek  $\alpha$  tussen  $\vec{g}$  en de  $X$ -as, de hoek  $\varphi$  tussen  $v_X$  en de  $X$ -as, en de hoek  $\beta$  tussen  $\vec{g}$  en  $\vec{E}_p$ , namelijk:

$$\varphi = \alpha + \arcsin\left(\frac{v_{Ne^*}}{v_X} \sin \alpha\right) \quad (4.9)$$

$$\beta = \frac{\pi}{2} - \vartheta_E - \alpha \quad (4.10)$$

Het zwaartepunt  $x_{sc}$  van het botsingsvolume, en daarmee de positie  $x_L$  van de laser, kunnen we evenals de relatieve snelheid  $g$  berekenen indien we de waarde van  $\alpha$  kennen:

$$x_{sc} = - \frac{z_{sc}}{\tan \varphi} \quad (4.11)$$

$$g = v_X \frac{\sin \varphi}{\sin \alpha} = \sqrt{v_X^2 + v_{Ne^*}^2 - \frac{2v_X v_{Ne^*} x_{sc}}{\sqrt{(x_{sc}^2 + z_{sc}^2)}}} \quad (4.12)$$

Hierbij komt de fysica ons te hulp. Vgl. (4.6) t/m (4.8) leren hoe de experimentele werkzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{exp}(\beta)$  variëren met de hoek  $\beta$ . Uit een kleinste-kwadraten aanpassing aan de experimentele resultaten valt daarom de waarde van  $\alpha$  te bepalen. In de praktijk doen we dit bij voorkeur voor de zeer sterke  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_7$ -overgang die een groot oriëntatie effect vertoont. Uit de resultaten in Tabel 4.1 blijkt dat deze experimentele bepaling van de positie  $x_{sc}$  binnen 0.10 mm overeenstemt met de uitlijning op de quadrantdiodes. Deze laatste uitlijning is echter vele malen sneller, eenvoudiger en ook nauwkeuriger reproduceerbaar.

datum	$X_L$ [mm]	$Z_L$ [mm]	$\alpha$	$x_{sc}$ [mm]	$x_L$ [mm]	$z_{sc}$ [mm]
870305	-1.60	1.80	28 (1)	-1.88 (0.12)	-1.72 (0.14)	1.82 (0.02)
870306	-1.20	1.80	38 (1)	-1.09 (0.05)	-0.97 (0.07)	1.78 (0.02)
870306	-0.80	1.80	42 (1)	-0.67 (0.03)	-0.53 (0.05)	1.77 (0.02)
860305	-0.40	1.80	52 (2)	-0.36 (0.04)	-0.49 (0.06)	1.76 (0.02)
860305	0.00	1.80	62 (2)	-0.05 (0.08)	-0.08 (0.10)	1.78 (0.02)
870305	0.40	1.80	71 (2)	0.47 (0.04)	0.69 (0.05)	1.80 (0.02)
870305	0.80	1.80	79 (4)	0.74 (0.03)	0.98 (0.05)	1.83 (0.02)

Tabel 4.1. : Ingestelde waarden van de laser-positie  $x_L$  op de hoofdbundel-as versus waarden bepaald onder gebruikmaking van polarisatie-effecten bij de  $\{a\}_5 \rightarrow \{a\}_7$  overgang. Er is sprake van een vrijwel constante off-set.

#### 4.5. Oriëntatie-effecten in het systeem $Ne^{**}-He$

In de voorgaande paragrafen is geschetst hoe de verwerking van de gemeten signaalverhouding  $I_L/I_R$  tot absolute werkzame doorsnedes  $Q_{L \leftarrow R}$  in haar werk gaat. We bespreken nu de gepolariseerde doorsnedes  $Q_{L \leftarrow R}^{exp}(\beta)$  die zijn bepaald voor bijna alle overgangen binnen het  $Ne^{**}\{a\}_{4,5,6,7}$  multiplet. De  $\{a\}_4$ -begintoestand liet zich met de voorhanden zijnde laser-dye soorten niet prepareren. We presenteren hier de meetresultaten voor een vaste botsingsenergie  $E_{cm} = \frac{1}{2}\mu g^2$  en beperken ons tot de optredende oriëntatie-effecten. We plaatsen de meetresultaten zowel in een semi-klassiek als in een quantummechanisch vergelijkingskader. De semiklassieke verwerking van resultaten voor het systeem  $Ne^{**}-Ne$  moet wachten op een latere gelegenheid [SANS7] orde aanzet, aangezien de beschrijving van de potentialen (laat staan de aanpassing van het gekoppelde-kanalen programma) hiervoor nog in een ontwikkelingsstadium verkeert.

#### 4.5.1. Experimenteel

In Fig. 4.5 a t/m c zijn de resultaten weergegeven van enkele van de voor dit verslag verrichtte "polarisatie-metingen". Deze overgangen vanuit de  $Ne^{**}\{\alpha\}_5$ -begintoestand zijn illustratief voor de meer in het algemeen waargenomen oriëntatie-effecten in de werkzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{exp}$ . Beelden daarvan worden in de volgende paragraaf getoond.

De metingen zijn gedaan bij vergelijkbare botsingsenergieën  $E_{cm} = 100$  meV, corresponderend met een positie  $x_L \approx -0.70$  mm van de laserbundel, dat wil zeggen met  $x_{sc} \approx -1.00$  mm.

De signaalverhouding  $I_l/I_k$  van botsinggeïnduceerde en directe fluorescentie wordt experimenteel bepaald als functie van de hoek  $\theta$  van de laser-polarisatie  $\vec{E}_p$  met de laboratorium Z-as. In dit hoofdstuk praten we liever in termen van de hoek  $\beta$  tussen  $\vec{E}_p$  en de asymptotische relatieve snelheid  $\vec{g}$ . De transformatie tussen deze twee hoeken wordt gegeven door Vgln (4.9) en (4.10).

Bij alle metingen werd de directe fluorescentie gemeten bij een vaste laser-polarisatierichting  $\mathcal{S}_E$ . Via een extra "K-polarisatiemeting" (zie paragraaf 3.4) moeten deze directe signalen achteraf worden gecalibreerd. Bij de calibratie van de signaalverhouding  $I_l/I_k$  naar absolute botsingsdoorsnedes wordt namelijk het detectie-efficiency profiel voor isotrope emissie van straling gebruikt [RUY84].

De enkele-toestand gepolariseerde doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{0|}$ ,  $Q_{l \leftarrow k}^{1|}$  en  $Q_{l \leftarrow k}^{2|}$  zijn bepaald met behulp van kleinste-kwadraten aanpassingen aan modelfuncties volgens de Vgln (4.6) t/m (4.8). In Tabel 4.2 zijn de resultaten weergegeven. Afhankelijk van de specifieke overgangen bepalen we de absolute waarden van de experimentele botsingsdoorsnedes met een nauwkeurigheid van ca. 30%

De metingen laten zien dat er grote verschillen bestaan qua grootte van botsingsdoorsnedes en grootte van oriëntatie-effecten. Beperken we ons voorlopig tot de overgangen met  $\{\alpha\}_5$  als begintoestand die in Fig.4.5 te zien zijn, dan concluderen we :

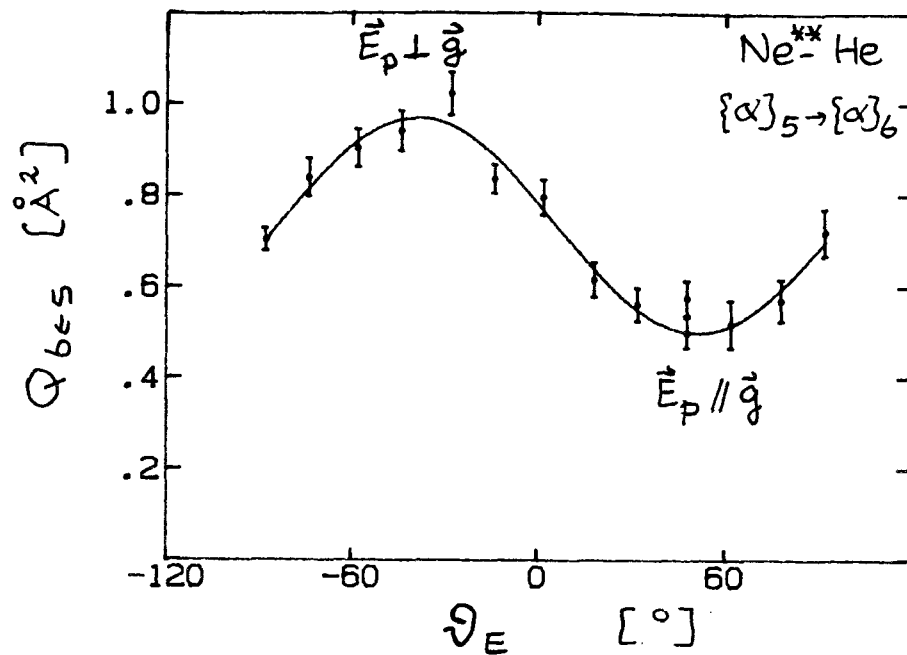
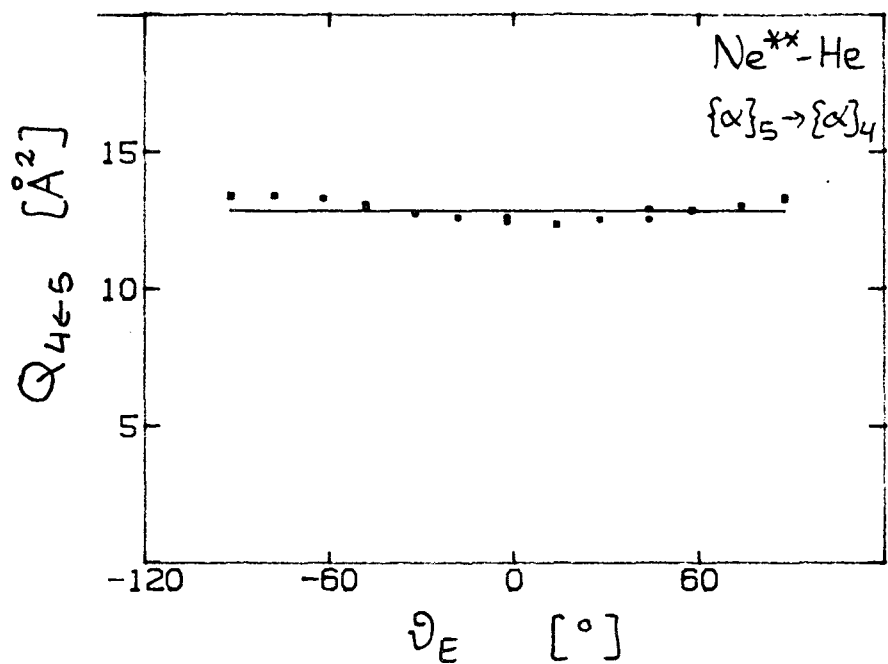
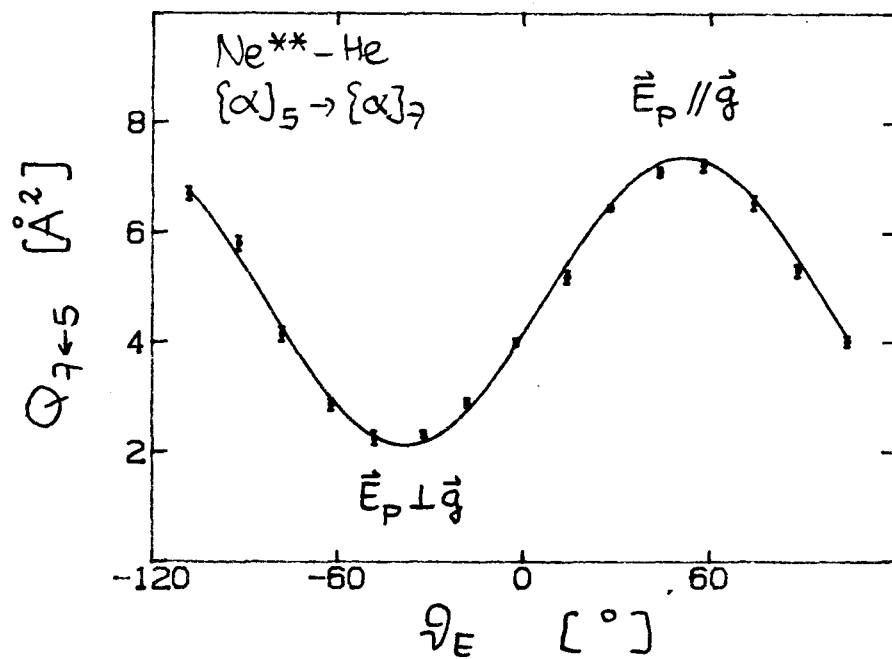


Fig. 4.5. : Experimenteel bepaalde Ne<sup>\*\*</sup>-He botsingsdoorsnedes  $Q_{l←k}^{exp}(\theta)$  voor de  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_{4,6,7}$  overgangen, als functie van de laserpolarisatie-richting  $\theta_E$ . De fitcurve is conform Vgl.(4.4). Alleen de statistische fouten zijn aangegeven. ( $E \sim 100$  meV)



- De werkzame doorsnede  $Q_{l \leftarrow k}^{|0|}$ , voor deze  $(J_k=1 \rightarrow J_l=1)$ -overgangen, behorende bij een stand van  $\vec{E}_p$  in de richting van  $\vec{g}$  ( $\beta = 0$ ,  $\vec{j} // \vec{g}$ ), is in het algemeen ongelijk aan de werkzame doorsnede  $Q_{l \leftarrow k}^{|1|}$  voor een onderling loodrechte oriëntatie van  $\vec{E}_p$  en  $\vec{g}$  ( $\beta = \pi/2$ ,  $\vec{j} \perp \vec{g}$ ).
- De overgang  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_4$  vertoont als enige geen polarisatie-effect, dwz.  $Q_{l \leftarrow k}^{|0|} \approx Q_{l \leftarrow k}^{|1|}$ .
- De overgang  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_6$  vertoont een klein polarisatie-effect  $Q_{l \leftarrow k}^{|0|} / Q_{l \leftarrow k}^{|1|} \approx 0.7$ .
- De overgang  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_7$  laat juist een zeer groot, omgekeerd polarisatie-effect  $Q_{l \leftarrow k}^{|0|} / Q_{l \leftarrow k}^{|1|} \approx 3.8$  zien.

Wat betreft de groottes van de gemeten botsingsdoorsnedes geldt dat  $Q_{6 \leftarrow 5} < Q_{7 \leftarrow 5} < Q_{4 \leftarrow 5}$ . In het vervolg zullen we meer in detail treden.

#### 4.5.2. Quantummechanisch

Met behulp van het volledig quantummechanisch gekoppelde-kanalenprogramma, waarvan eerder sprake was, zijn gepolariseerde doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{M_k}$  berekend voor alle overgangen binnen het  $Ne^{**}\{\alpha\}_{4,5,6,7}$  multiplet. Als inputpotentialen zijn de  $Ne^{**}$ -He potentialen van Hennecart gebruikt voor internucleaire afstanden  $R > 4.5 a_0$ . In het binnengebied  $R < 4.5 a_0$  zijn deze potentialen uitgebreid met behulp van semiempirische extrapolaties, zoals beschreven in paragraaf 2.2.

De relevante resultaten van deze berekeningen zijn, samen met de desbetreffende experimenteel bepaalde doorsnedes, weergegeven in Tabel 4.2 en Fig. 4.7. We merken hierbij op dat uit de aard der zaak bij elke berekening slechts voor één begintoestand de botsingsenergie de juiste is. Vandaar de variatie in energiewaarden in de tabel. Om dezelfde reden ontbreken voor sommige overgangen dan ook bijbehorende experimentele resultaten. In het algemeen kunnen we concluderen dat de overeenstemming tussen theorie en experiment uitstekend is. Zowel de gemeten absolute groottes van de botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{M_k}$  als de waargenomen oriëntatie-effecten worden quantummechanisch dicht benaderd.

overgang $\{\alpha\}_k \rightarrow \{\alpha\}_l$	$E_{cm}$ [meV]	$Q^{ 0 }$ [A <sup>2</sup> ]		$Q^{ 1 }$ [A <sup>2</sup> ]		$Q^{ 2 }$ [A <sup>2</sup> ]		$Q^{ 0 }/Q^{ 1 }$	
		QM	EXP	QM	EXP	QM	EXP	QM	EXP
5→4	60 60	8.9	9.6	10.1	8.7	-	-	0.9	1.1
	100 100	14.4	13.2	13.7	12.5	-	-	1.0	1.1
	140 140	16.9	14.6	16.1	13.3	-	-	1.1	1.1
5→6	60 70	0.32	0.32	0.34	0.62	-	-	0.92	0.52
	100 100	0.66	0.50	0.93	0.97	-	-	0.71	0.52
	140 140	0.77	0.75	1.61	1.27	-	-	0.48	0.60
5→7	60 55	5.0	5.0	1.17	1.4	-	-	4.3	3.6
	100 100	7.1	7.0	1.91	2.0	-	-	3.7	3.5
	140 140	7.7	9.2	2.15	2.7	-	-	3.6	3.4
6→4	75 -	0.00054	-	0.00056	-	0.0011	-	0.96	-
	115 100	0.376	0.45	0.592	0.69	0.104	0.088	0.64	0.65
	155 -	0.72	-	0.80	-	0.48	-	0.9	-
6→5	75 -	0.0014	-	0.0047	-	0.0013	-	0.31	-
	115 -	0.047	0.096	0.2	0.23	0.0234	0.033	0.23	0.13
	155 -	0.23	-	0.51	-	0.14	-	0.45	-
6→7	75 -	6.7	-	4.1	-	2.36	-	1.6	-
	115 100	7.9	8.3	6.3	6.3	3.1	-	1.3	1.3
	155 -	8.6	-	6.6	-	5.0	-	1.3	-
7→4	100 100	0.00004	0.20	0.0007	0.49	-	-	0.054	0.41
	140 140	0.43	0.44	1.3	1.3	-	-	0.33	0.33
	180 -	1.1	-	2.7	-	-	-	0.40	-
7→5	100 100	0.071	0.77	0.0023	0.13	-	-	30.6	6.0
	140 140	2.4	2.6	0.30	0.37	-	-	9.0	7.0
	180 -	4.7	-	0.70	-	-	-	6.8	-
7→6	100 100	0.85	0.89	6.9	4.3	-	-	0.12	0.21
	140 140	2.1	2.0	9.7	7.2	-	-	0.22	0.28
	180 -	2.6	-	11.8	-	-	-	0.22	-

Tabel 4.2. : Experimentele en quantummechanische gepolariseerde werkwzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{M_k}$  voor  $Ne^{**}-He$  bij verschillende energieën  $E$ . In een aantal gevallen is sprake van een energie-discrepantie en gaat de vergelijking mank.

### 4.5.3. Semiklassiek

Met behulp van de semiklassieke theorie die in hoofdstuk 2 beschreven is kunnen we absolute gepolariseerde botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{M_k}$  bepalen voor alle overgangen binnen het  $\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_{4,5,6,7}$  multiplet.

Het maakt daarbij verschil in welke  $\Omega$ -klasse er een avoided-crossing tussen twee adiabatische potentiaalcurven van deze toestanden optreedt. Voor de  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$  potentialen in appendix ? zien we een  $\{\alpha\}_5 \leftrightarrow \{\alpha\}_7$  avoided crossing voor  $\Omega = 0^-$ . Hierop is het "single-curve-crossing" model uitstekend toepasbaar. Voor  $\Omega = 1$  is de situatie gecompliceerder, daar we een drietal dicht bij elkaar gelegen avoided-crossings  $\{\alpha\}_4 \leftrightarrow \{\alpha\}_5$ ,  $\{\alpha\}_5 \leftrightarrow \{\alpha\}_6$  en  $\{\alpha\}_6 \leftrightarrow \{\alpha\}_7$  hebben. We dienen hier in het algemeen het "multiple-curve-crossing" model toe te passen. In Fig. 4.6 worden detailbeelden van deze avoided-crossings getoond. Een totaaloverzicht bood reeds Fig. 2.13.

Voor elke avoided crossing tussen de adiabatische potentialen  $E_k$  en  $E_l$  zijn de crossing-parameters bepaald door aanpassing aan een karakteristieke quantummechanische doorsnede. De nauwe, realistische grenzen van het aanpassingsbereik werden daarbij bepaald uit Fig. 4.6, de onzekerheid in de potentialen in aanmerking genomen. Zoals bekend, zijn deze crossing-parameters :

- $R_C$  = crossing-radius (punt van kleinste energie-afstand  $E_k - E_l$ )
- $H_C$  = crossing-energie (gemiddelde energie  $(E_k + E_l)/2$  bij de crossing-radius)
- $H_{kl}$  = koppelingsmatrix-element (helft van  $E_k - E_l$ )
- $F_k, F_l$  = hellingen van diabatische potentialen bij de crossing-radius
- $v_{kl}$  = referentiesnelheid van de crossing ( $v_{kl} = H_{kl}^2 / \hbar |F_k - F_l|$ )

De gebruikte parameterwaarden staan in Tabel 4.3.

Een belangrijk detail dat uit deze Tabel spreekt is, dat de referentiesnelheden van crossing I en III ( $v_{kl} = 100$  m/s) aanzienlijk kleiner zijn dan die van crossing II en IV ( $v_{kl} = 3000$  m/s). Dit verschil wordt vooral veroorzaakt door de grote verschillen in de energiebreedtes  $H_{lk}$  van de crossing. Fysisch kunnen we dit als volgt begrijpen : een crossing met een grote energie-afstand vereist hoge snelheden om een redelijke "overspringkans" te verkrijgen.

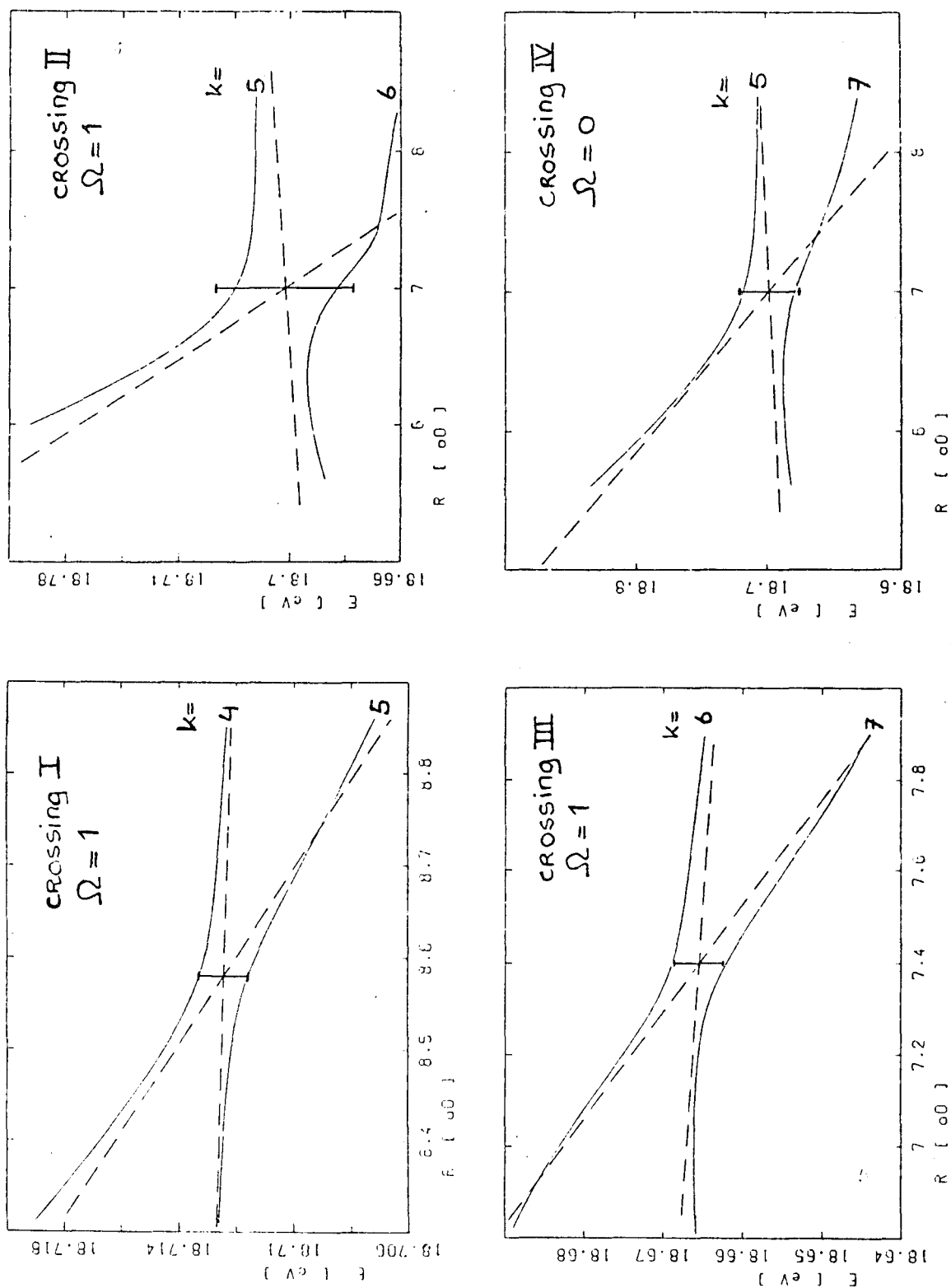


Fig.4.6. : Avoided crossings van adiabatische (—) potentiaalcurves voor het  $\{\alpha\}_{4,5,6,7}$  multiplet. De hellingen van de "effectieve" diabatische (---) curves en de koppelmatrix-elementen staan in Tabel 4.4.



crossing	toestanden $\{\alpha\}_k \leftrightarrow \{\alpha\}_l$	$R_C$ [ $a_0$ ]	$H_C$ [eV]	$H_{kl}$ [eV]	$F_k$ [eV/ $a_0$ ]	$F_l$ [eV/ $a_0$ ]	$V_{kl}$ [m/s]
I	4 5	8.58	18.7124	$8.00 \cdot 10^{-4}$	$2.2 \cdot 10^{-2}$	$1.2 \cdot 10^{-3}$	20
II	5 6	7.03	18.7029	$2.40 \cdot 10^{-2}$	$7.5 \cdot 10^{-2}$	$-5.0 \cdot 10^{-4}$	3850
III	6 7	7.40	18.6661	$3.10 \cdot 10^{-3}$	$4.4 \cdot 10^{-2}$	$3.4 \cdot 10^{-3}$	120
IV	5 7	7.00	18.6972	$2.34 \cdot 10^{-2}$	$8.6 \cdot 10^{-2}$	$-8.5 \cdot 10^{-3}$	2930

Tabel 4.3. : Karakteristieke parameters voor de avoided crossings van Fig.4.6.

In de semiklassieke berekeningen werd ook rotationele koppeling meegenomen. Hiertoe bepaalden we de effectieve locking-radii  $R_L$  van de betrokken  $Ne^{**}\{\alpha\}_j = 4,5,6,7$  - toestanden uit de adiabatische potentiaalcurves zoals uitgelegd in paragraaf 2.4. De gebruikte waarden worden in Tabel 4.4 opgesomd.

toestand $\{\alpha\}_i$	locking-radius $R_L$ [ $a_0$ ]	$H_k$ [eV]
4	8.00	18.7034
5	2.00	18.6927
6	7.25	18.6362
7	7.00	18.6121

Tabel 4.4. : Effectieve lockingradii, volgend uit het verloop van de  $\{\alpha\}_{4,5,6,7}$  adiabatische potentiaalcurves.

In Tabel 4.5 worden de resultaten van de semiklassieke berekeningen naast de quantummechanische resultaten gezet. Hetzelfde gebeurt in Fig. 4.7. Er bestaat een schril contrast tussen de benodigde rekestijden. De quantummechanische berekeningen vragen in totaal meerdere uren op de Burroughs-7900 mainframe-computer (programmeertaal FORTRAN), terwijl een enkele overgang bij de gewenste energie semiklassiek in  $\pm 3$  minuten op de M68000 micro-computer (programmeertaal PEP) doorgerekend kan worden. Frappant is de veelal uitstekende overeenkomst tussen de resulterende botsingsdoorsnedes. Op de verschillende facetten van Tabel 4.5 gaan we nu wat dieper in. Meer inzicht in de quantummechanische "black box" berekeningen was immers een hoofddoel van dit werk.

### Grootte van botsingsdoorsnedes

De groottes van de inelastische botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$  voor een overgang van een  $\{\alpha\}_k$  - naar een  $\{\alpha\}_l$  - toestand worden in de eerste plaats bepaald door de aan- of afwezigheid van avoided crossings tussen de adiabatische potentiaalcurves behorende bij deze toestanden. Hiermee kunnen we de grote botsingsdoorsnedes voor de overgangen  $\{\alpha\}_4 \leftrightarrow \{\alpha\}_5$ ,  $\{\alpha\}_7 \rightarrow \{\alpha\}_6$  (via respectievelijk crossing I en III voor  $\Omega = 1$ ) en  $\{\alpha\}_5 \leftrightarrow \{\alpha\}_7$  (via crossing IV bij  $\Omega = 0^-$ ) begrijpen. Alhoewel een vergelijking met overgangen die buiten het  $\{\alpha\}_{4,5,6,7}$  multiplet voeren, enigzins buiten het kader van dit verslag valt, laat zich wel opmerken dat inderdaad de huidige botsingsdoorsnedes relatief groot zijn (SAN87).

Voor de  $\{\alpha\}_5 \leftrightarrow \{\alpha\}_6$  overgang (via crossing II bij  $\Omega = 1$ ) zouden we misschien een grote botsingsdoorsnede verwachten; echter, deze overgangen, evenals die voor  $\{\alpha\}_4 \leftrightarrow \{\alpha\}_7$ ,  $\{\alpha\}_4 \leftrightarrow \{\alpha\}_6$  en opnieuw  $\{\alpha\}_5 \leftrightarrow \{\alpha\}_7$  (maar nu bij  $\Omega = 1$ ), vinden plaats via passage van drie avoided crossings. Volgens de semiklassieke beschouwingen is crossing II een "hoge-snelheids"-crossing, waarbij van een zwakke koppeling tussen de adiabatische toestanden sprake is. Wil bij deze crossing een netto overgang plaatvinden, is dus een hoge radiële snelheid vereist. In dat geval worden echter de beide "lage-snelheids"-crossings I en III, met een sterke koppeling van de adiabatische toestanden, altijd diabatisch doorlopen ("doorschieten"). Hiermee kunnen we begrijpen dat voor deze serie overgangen alleen de botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$  voor de  $\{\alpha\}_4 \leftrightarrow \{\alpha\}_7$ -overgangen redelijk groot zijn. Tevens volgt hieruit dat de  $\{\alpha\}_7 \leftrightarrow \{\alpha\}_5$ -overgangen voor het overgrote deel voortkomen uit de geïsoleerde avoided crossing bij  $\Omega = 0^-$  klasse.

overgang $\{\alpha\}_k \rightarrow \{\alpha\}_l$	$E_{cm}$ [meV]	$Q^{ 0 }$ [A <sup>2</sup> ]		$Q^{ 1 }$ [A <sup>2</sup> ]		$Q^{ 2 }$ [A <sup>2</sup> ]		$Q^{ 0 }/Q^{ 1 }$	
		QM	SEM	QM	SEM	QM	SEM	QM	SEM
4→5	50	6.0	7.8	6.4	6.1	8.2	9.4	0.93	1.3
	90	6.3	6.74	7.5	6.91	12.7	8.34	0.84	1.0
	130	6.65	6.60	9.57	7.43	13.8	7.82	0.70	0.9
4→6	50	1.05	0.12	1.03	0.14	4.69	0.06	1.0	0.9
	90	1.26	0.24	1.18	0.24	1.16	0.13	1.1	1.0
	130	1.87	0.33	1.53	0.28	1.67	0.19	1.2	1.2
4→7	50	2.04	1.28	2.55	1.75	1.19	0.56	0.80	0.74
	90	2.69	2.81	3.54	3.52	2.00	1.25	0.77	0.80
	130	3.35	4.42	4.53	5.15	2.25	2.00	0.74	0.85
5→4	60	8.9	16.1	16.4	13.2	-	-	0.9	1.0
	100	14.4	12.8	14.3	14.0	-	-	1.0	0.9
	140	16.9	11.3	13.2	15.0	-	-	1.1	0.85
5→6	60	0.32	0.002	0.34	0.004	-	-	0.92	0.50
	100	0.66	0.003	0.93	0.005	-	-	0.71	0.60
	140	0.77	0.006	1.61	0.007	-	-	0.48	0.85
5→7	60	5.0	4.63	1.17	1.09	-	-	4.3	4.2
	100	7.1	6.82	1.91	2.02	-	-	3.7	3.4
	140	7.7	8.13	2.15	2.75	-	-	3.6	2.9

Tabel 4.5.a: Semiklassieke en quantummechanische gepolariseerde werkwzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{M_k}$  voor Ne<sup>\*\*</sup>-He, bij een aantal energieën E.

overgang $\{a\}_k \rightarrow \{a\}_l$	$E_{cm}$ [meV]	$Q^{ 0 }$ [A <sup>2</sup> ]		$Q^{ 1 }$ [A <sup>2</sup> ]		$Q^{ 2 }$ [A <sup>2</sup> ]		$Q^{ 0 }/Q^{ 1 }$	
		QM	SEM	QM	SEM	QM	SEM	QM	SEM
6→4	75	0.00054	-	0.00056	-	0.0011	-	0.96	-
	115	0.376	0.015	0.592	0.045	0.104	0.0045	0.64	0.4
	155	0.72	0.10	0.80	0.15	0.48	0.015	0.9	0.7
	195	1.24	0.20	1.16	0.20	0.882	0.10	1.0	1.0
6→5	75	0.0014	-	0.0047	-	0.0013	-	0.31	-
	115	0.047	0.003	0.2	0.010	0.0234	0.003	0.23	0.3
	155	0.23	0.02	0.51	0.04	0.14	0.005	0.45	0.5
	195	0.553	0.04	0.792	0.06	0.345	0.02	0.70	0.7
6→7	75	6.7	5.91	4.1	4.55	2.36	2.98	1.6	1.3
	115	7.9	5.94	6.3	3.58	3.1	3.72	1.3	1.6
	155	8.6	5.67	6.6	3.38	5.0	3.95	1.3	1.7
	195	9.69	5.18	10.7	3.35	5.72	3.91	0.91	1.5
7→4	100	0.00004	0.0006	0.0007	0.015	-	-	0.054	0.04
	140	0.43	0.17	1.3	1.43	-	-	0.33	0.12
	180	1.1	0.66	2.7	3.60	-	-	0.40	0.17
	220	1.49	1.19	3.76	5.26	-	-	0.40	0.23
7→5	100	0.071	0.17	0.0023	0.004	-	-	30.6	4.3
	140	2.4	2.50	0.30	0.20	-	-	9.0	13.0
	180	4.7	4.75	0.70	0.63	-	-	6.8	7.6
	220	5.76	6.35	0.95	1.15	-	-	6.07	5.5
7→6	100	0.85	2.64	6.9	6.64	-	-	0.12	0.48
	140	2.1	3.84	9.7	6.55	-	-	0.22	0.60
	180	2.6	4.56	11.8	6.48	-	-	0.22	0.71
	220	5.04	4.88	16.4	6.28	-	-	0.31	0.77

**Tabel 4.5.b:** Semiklassieke en quantummechanische gepolariseerde werkzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{M_k}$  voor Ne<sup>\*\*</sup>-He, bij een aantal energien  $E$ .

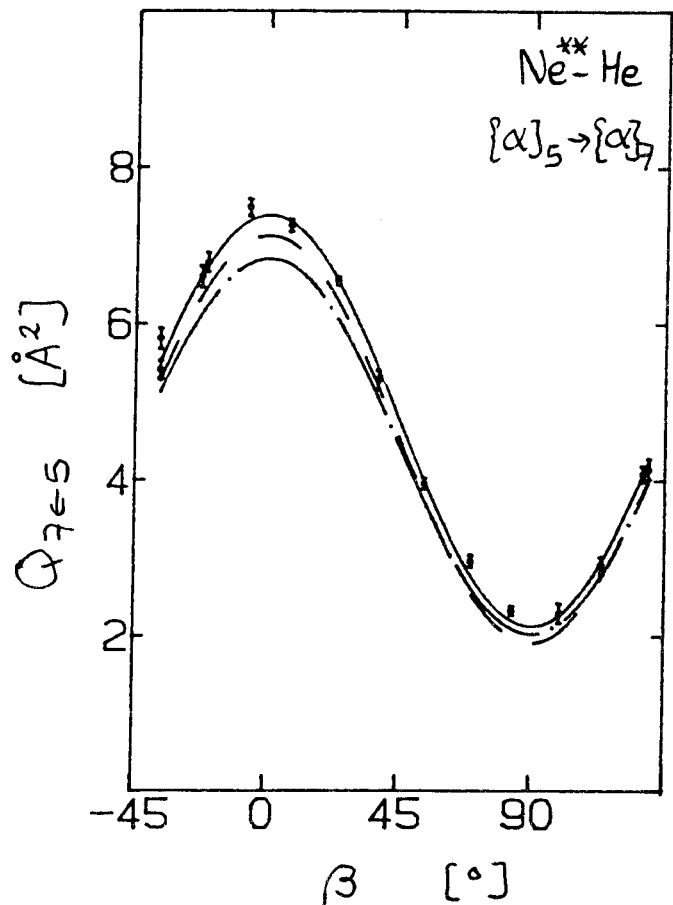
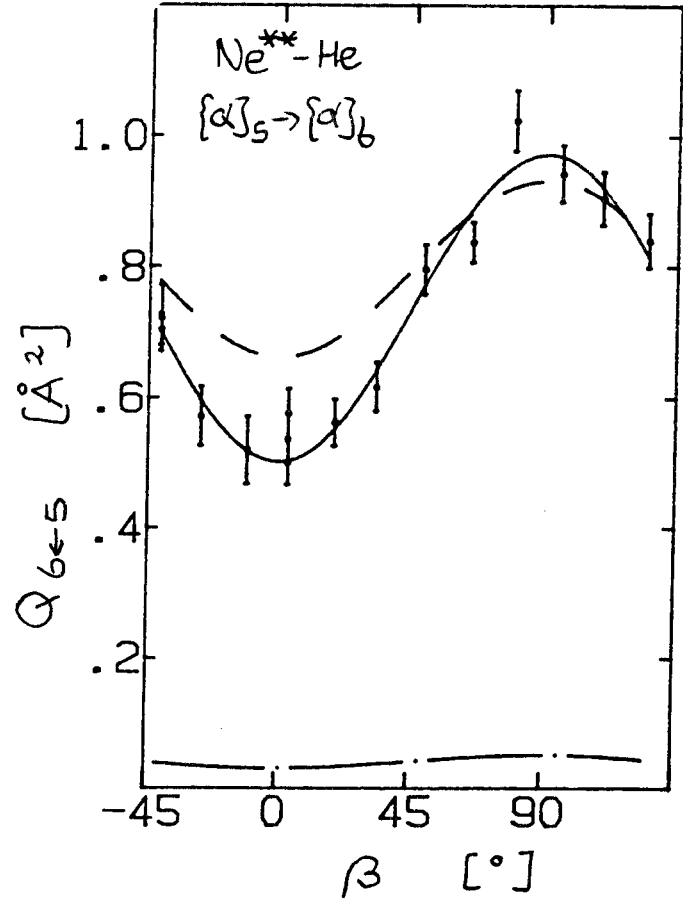
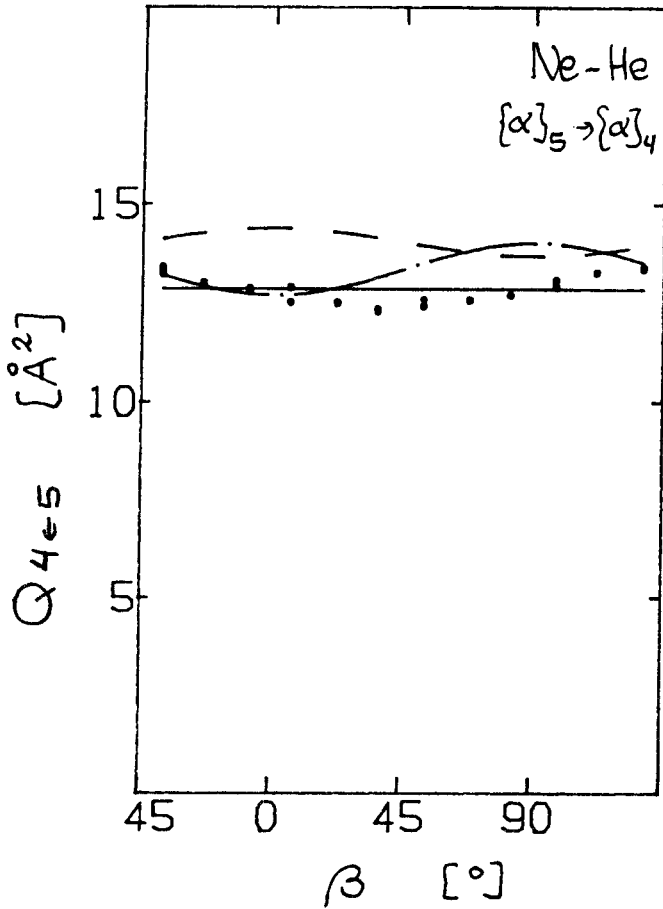


Fig.4.7a :

Experimentele (—), quantummechanische (---) en semiklassieke (-.-) werkzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{exp}(\beta)$  voor  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$ , als functie van de hoek  $\beta$  tussen de laserpolarisatie  $\vec{E}_p$  en de relatieve snelheid  $\vec{g}$ . Alle curves zijn conform Vgl.(4.4) met botsingsenergie  $E \approx 100$  meV.

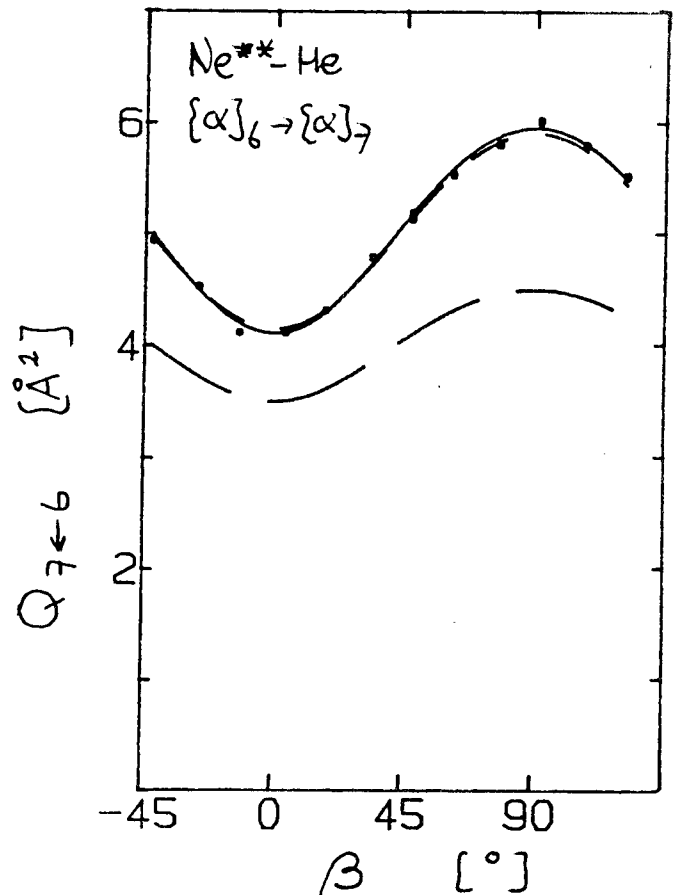
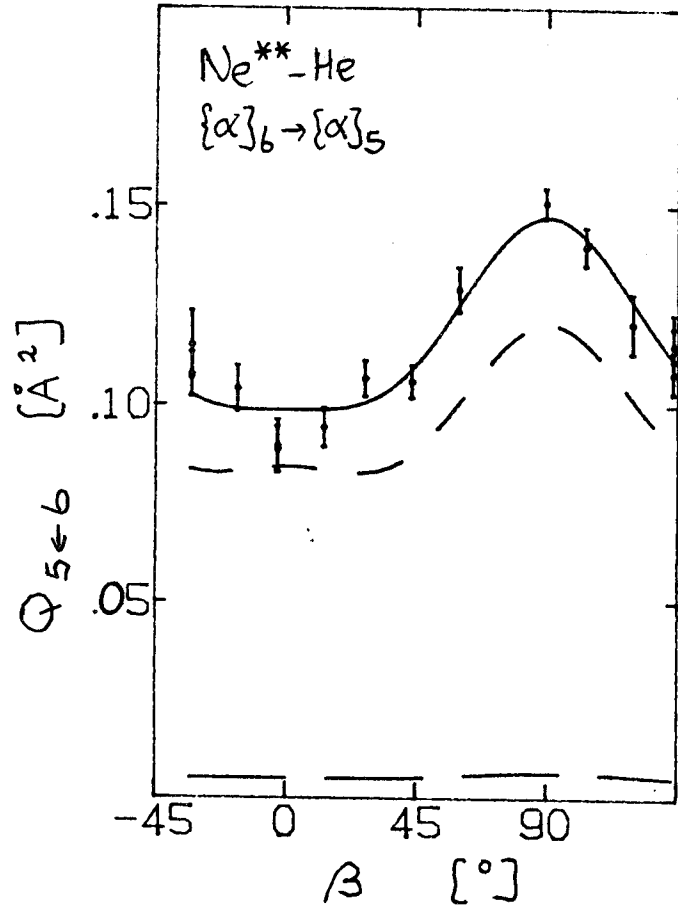
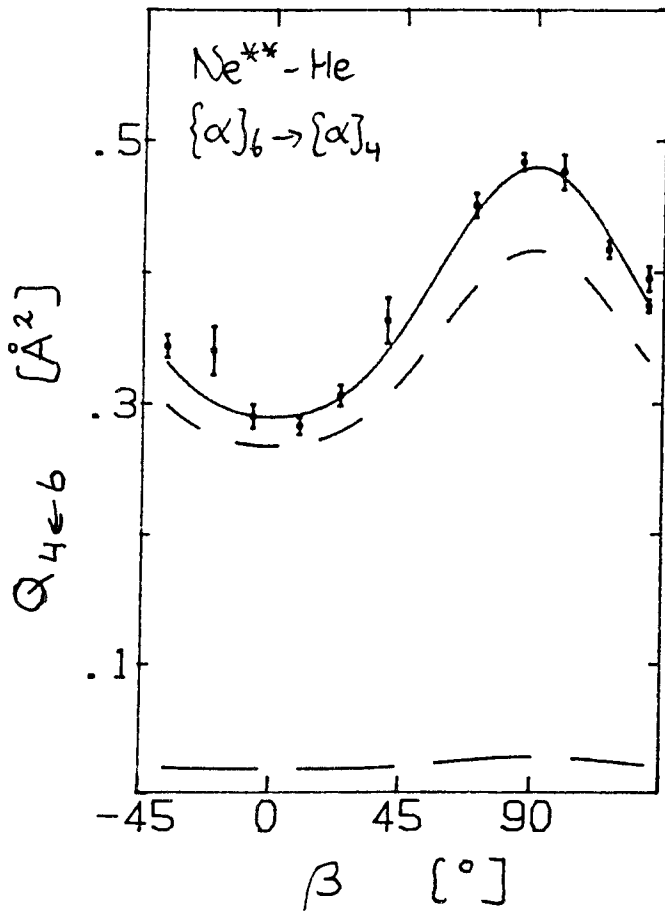


Fig.4.7b :

Experimentele (—), quantummechanische (---) en semiklassieke (-.-) werkzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{exp}(\beta)$  voor  $Ne^{**}$ -He, als functie van de hoek  $\beta$  tussen de laserpolarisatie  $\vec{E}_p$  en de relatieve snelheid  $\vec{g}$ . Alle curves zijn conform Vgl.(4.5) met botsingsenergie  $E \simeq 100$  meV.

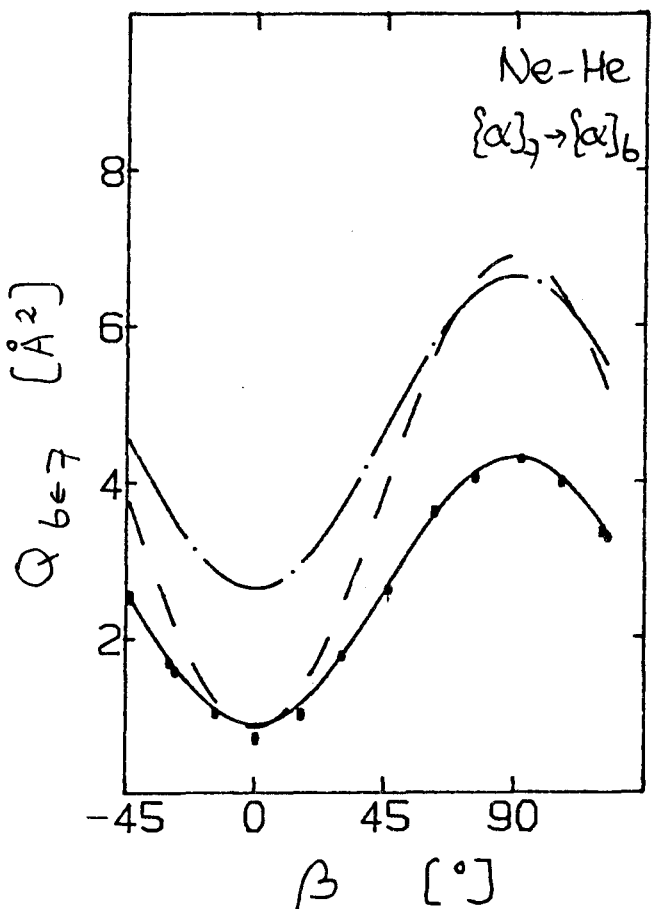
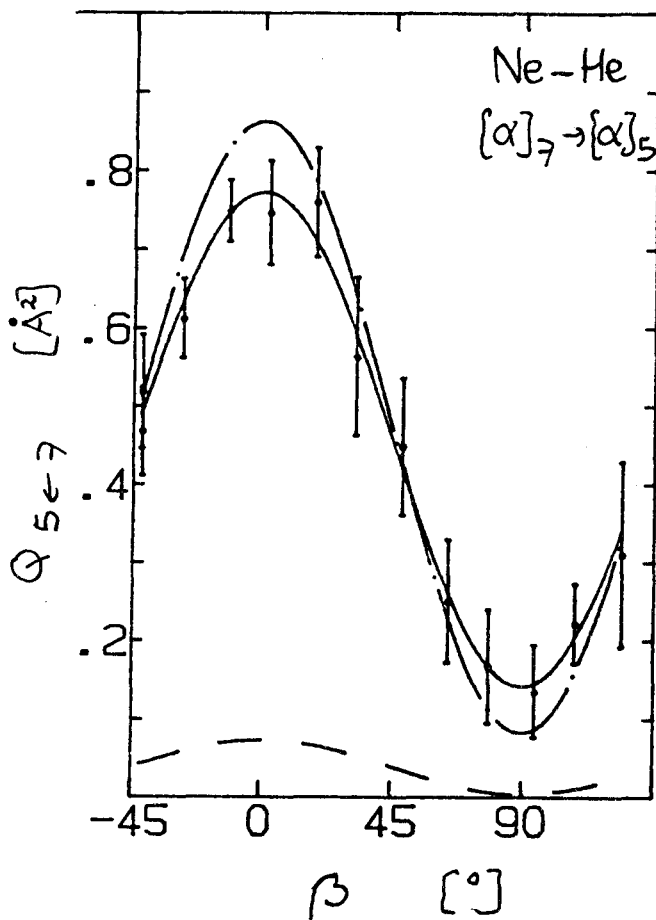
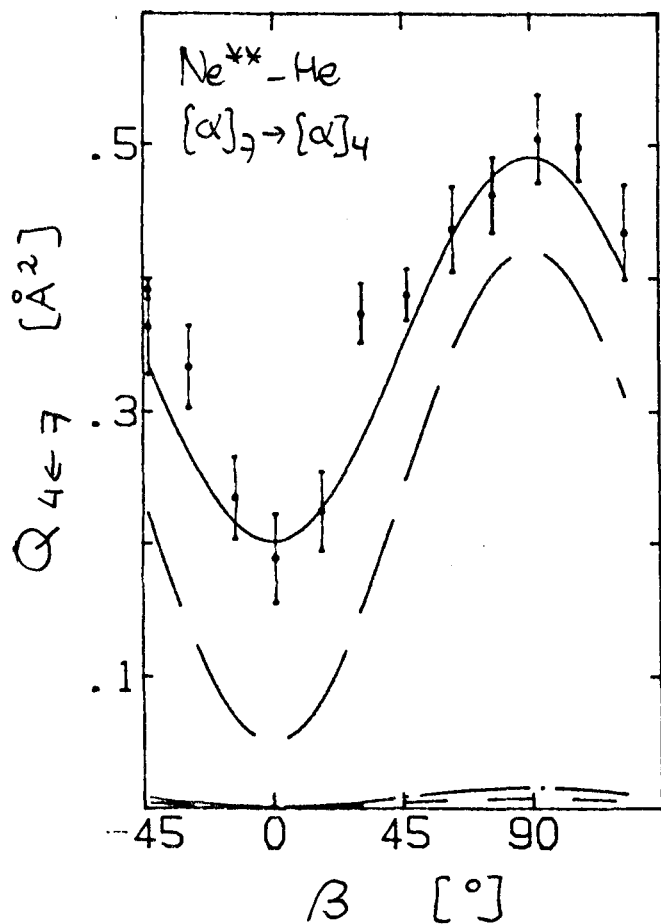


Fig.4.7c :

Experimentele (—), quantummechanische (---) en semiklassieke (-.-) werkzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{exp}(\beta)$  voor  $\text{Ne}^{**}-\text{He}$ , als functie van de hoek  $\beta$  tussen de laserpolarisatie  $\vec{E}_p$  en de relatieve snelheid  $\vec{g}$ . Alle curves zijn conform Vgl.(4.4) met botsingsenergie  $E \approx 100$  meV.

Voor alle overgangen via avoided crossings geldt dat de botsingsdoorsnedes voor overgangen van een  $\{\alpha\}_k$  toestand naar een lager gelegen  $\{\alpha\}_l$ -toestand groter zijn dan de doorsnedes voor het inverse proces. Dit hangt samen met het feit, dat de radiële energie van de  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$  atomen ter plekke van de avoided-crossing bepalend is voor de grootte van de overgangswaarschijnlijkheid  $P_{lk}$ . Bij een constante initiële energie ten opzichte van de begintoestand is deze radiële energie voor de eerste soort overgangen groter dan voor het inverse proces. Voor de beschouwde overgangen is dit in het algemeen een gunstige randvoorwaarde.

### Opbouw van botsingsdoorsnedes

De semiklassieke beschrijving van het botsingsproces (1.1) maakt het mogelijk om de bijdragen  $dQ_{l \leftarrow k}/dN(b)$  van verschillende botsingsparametergebieden (cq waarden van het rotationeel impulsmomentquantumgetal  $N$ ) aan de totale werkzame doorsnede te onderscheiden (zie paragraaf 2.5). Ook uit de resultaten van de quantummechanische berekeningen kunnen we deze verdelingen afleiden. In Fig. 4.8. worden deze semiklassieke en quantummechanische verdelingen  $dQ_{l \leftarrow k}/dN(b)$  vergeleken voor overgangen die verlopen via elk van de vier avoided crossings. Wanneer we de quantummechanische oscillaties die een gevolg zijn van interferentie-effecten uitmiddelen, vinden we een kwalitatief zeer goede overeenstemming, zowel wat betreft de ligging van de maximale bijdragen aan  $Q_{l \leftarrow k}$  als wat betreft het algemene gedrag. Het is misschien nuttig hier nogmaals op te merken dat een bijdrage  $dQ_{l \leftarrow k}/db$  aan de doorsnede  $Q_{l \leftarrow k}$  (of het equivalent in termen van  $N$ ) gegeven wordt door een overgangskans  $P_{kl}$  maal een tref-oppervlakje  $2\pi b db$ . Dit verklaart waarom voor  $b \rightarrow 0$  en voor  $b \rightarrow \infty$  de bijdragen naar nul gaan.

Uit Fig. 4.8 blijkt wederom de zeer kleine bijdrage aan de inelastische botsingsdoorsnede  $Q_{l \leftarrow k}$  voor de  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_6$ -overgang. Tevens onderkennen we een direct verband tussen de referentiesnelheid  $v_{kl}$  van een avoided crossing en het gebied van impactparameters waarvoor grote bijdrages aan de werkzame doorsnede geleverd worden. "Hoge-snelheids"-crossings, zoals bij de  $\{\alpha\}_5 \leftrightarrow \{\alpha\}_7$  overgangen, vereisen een hoge radiële snelheid en de botsingsdoorsnede wordt dus bepaald door het gebied van kleine impactparameters ("kopse" botsingen). Daarentegen vinden inelastische overgangen via "lage-snelheids"-crossings juist plaats voor "scherende" of "volle" botsingen met grotere botsingsparameter. In Fig. 2.14 werd deze classificatie van de verschillende overgangen schematisch toegelicht.



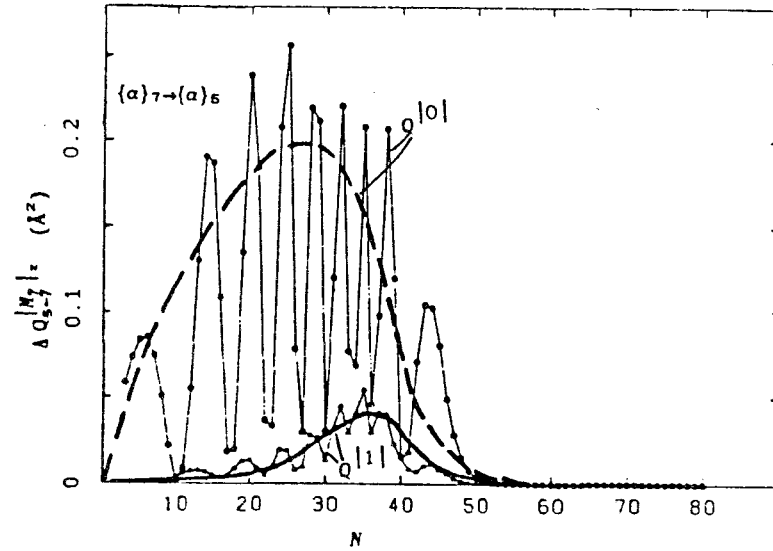
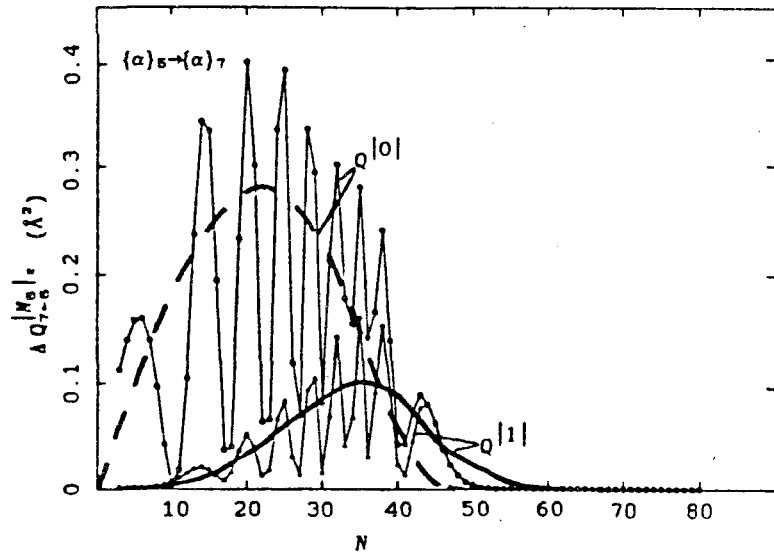
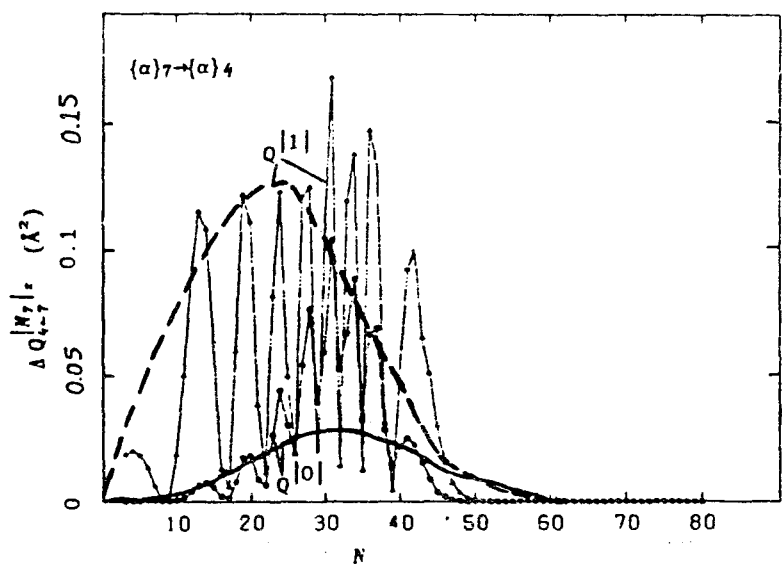
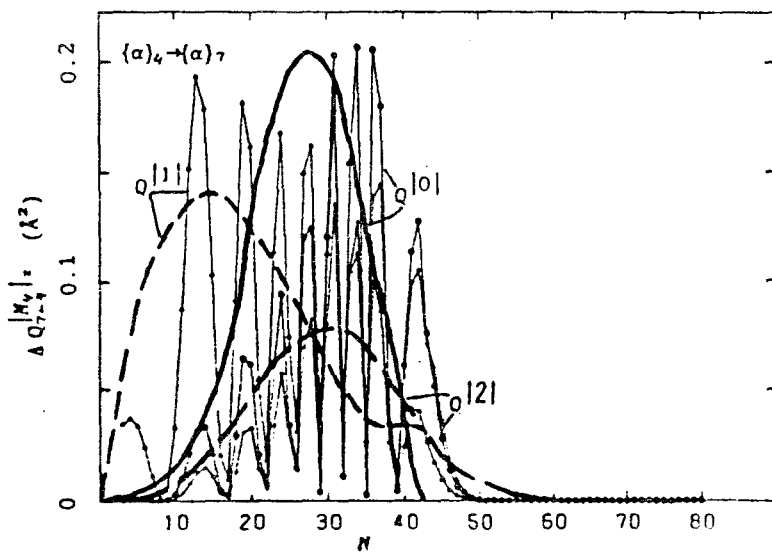
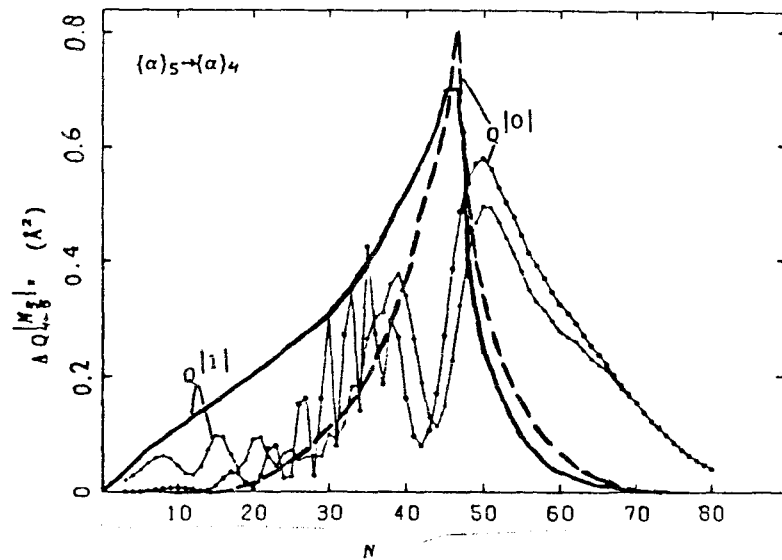
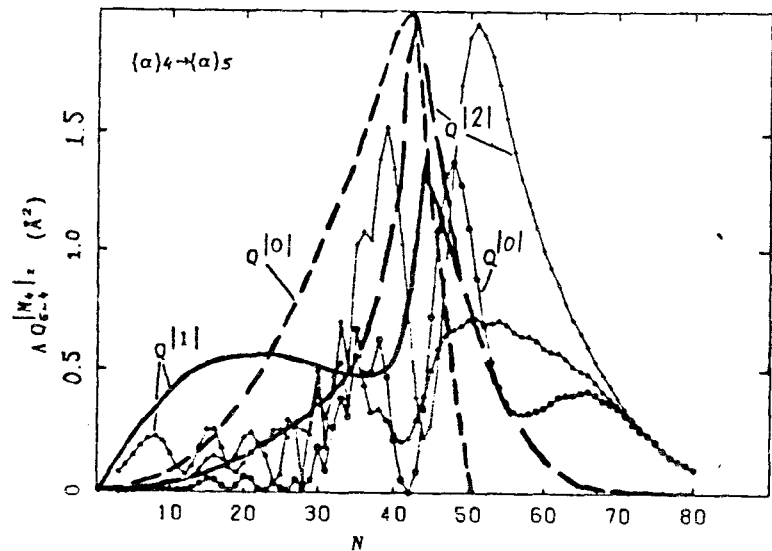


Fig.4.8. : Quantummechanisch (—) en semiklassiek (---) berekende bijdragen  $\Delta Q_{l \leftarrow k}^{M_k}(N)$  aan de werkzame doorsnede.



## Grootte van oriëntatie-effecten

De grootte van het oriëntatie-effect in de botsingsdoorsnede  $Q_{l \leftarrow k}$  wordt bepaald door de verdeling  $dQ_{l \leftarrow k}/db$  en de competitie tussen rotationele koppelingen en "locking" van het elektronisch impulsmoment  $\vec{J}$  aan de internucleaire as. In paragraaf 2.5 zagen we reeds dat de ontbinding van de enkele  $|\alpha_k J_k M_k\rangle$  begintoestand naar verschillende lichaamsvaste  $|\alpha_k J_k \mu_k\rangle$  toestanden tijdens de botsing van groot belang is.

Voor botsingen bij botsingsparameters, enkele malen kleiner dan de crossing-radius, verandert de oriëntatie van  $\vec{J}$  ten opzichte van de internucleaire as tijdens de botsing vrijwel niet. Dit geldt bij deze "kopse" botsingen ook voor de uitgaande baanbeweging. De kwestie, of de  $Ne^{**}$ -toestanden tijdens de botsing al dan niet "gelockt" zijn, beïnvloedt dit behoud van  $\Omega$ -waarde nauwelijks. De asymptotische oriëntatie van  $\vec{J}$ ,  $\Omega = |M_k|$ , bepaalt direct de adiabatische potentiaalcurves waarover de beweging plaatsvindt. Aangezien avoided crossings tussen deze potentiaalcurves zich steeds voor slechts één  $\Omega$ -waarde ( $\Omega=1$  of  $\Omega=0$ ) voordoen, verwachten we in dit gebied van kleine botsingsparameters grote oriëntatie-effecten.

Voor grote botsingsparameters, ongeveer gelijk aan de crossing-radius, verandert de oriëntatie van  $\vec{J}$  zo sterk dat zelfs een "inversie" optreedt ( $M_k=0 \rightarrow \Omega=1$  en  $M_k=\pm 1 \rightarrow \Omega=0$ ). Ook bij deze "scherende" botsingen zal "locking" een ondergeschikte rol spelen. We verwachten in dit gebied van grote impactparameters wederom een groot, maar tegengesteld, oriëntatie-effect te zien.

In het tussengebied van botsingsparameters vindt tijdens de botsing juist een sterke opmenging plaats van de  $|\alpha_k J_k M_k\rangle$  begintoestand in verschillende  $|\alpha_k J_k \mu_k\rangle$ -toestanden. Dit leidt dan ook tot een uitmiddeling van oriëntatie-effecten. De aanwezigheid van "locking" biedt in deze situatie de mogelijkheid om toch nog een redelijk oriëntatie-effect te behouden.

Het bovenstaande passen we hieronder toe op de afzonderlijke overgangen:

- De  $\{a\}_5 \leftrightarrow \{a\}_7$  overgangen worden vrijwel uitsluitend geregeerd door de  $\Omega = 0^-$  crossing. Ze vertonen grote polarisatie-effecten  $Q_{l \leftarrow k}^{|0|} \gg Q_{l \leftarrow k}^{|1|}$  doordat het botsingsproces zich vanwege de hoge referentiesnelheid vooral bij kleine botsingsparameters afspeelt, zodat de ontbrekende "locking" van de  $\{a\}_5$  toestand geen rol speelt. Voor de  $\{a\}_7$  begintoestand is de energie bij de avoided-crossing lager dan voor de  $\{a\}_5$  begintoestand. De bijdrage aan de  $\{a\}_7 \rightarrow \{a\}_5$  botsingsdoorsnede komen daarom van nog kleinere botsingsparameters, hetgeen het grotere polarisatieeffect en de kleinere botsingsdoorsnede voor de  $\{a\}_7 \rightarrow \{a\}_5$  overgang ten opzichte van de  $\{a\}_5 \rightarrow \{a\}_7$  overgang geheel verklaart.
- De  $\{a\}_6 \leftrightarrow \{a\}_7$  overgangen vinden plaats via een in grote mate geïsoleerde avoided crossing voor  $\Omega = 1$ . De vereiste kleine radiële snelheden voor sterke niet-adiabatische koppelingen maken dat deze botsing zich afspeelt bij grotere botsingsparameters. De meer naar binnen gelegen  $\{a\}_5 \leftrightarrow \{a\}_6$  crossing met zijn hoge referentiesnelheid wordt dan ook met zeer grote kans adiabatisch doorlopen ("volgen"). Door de grote  $\Omega$ -opmenging bij het bereiken van de crossing radius, die tengevolge van volledige "locking" van beide  $\text{Ne}^{**}$ -toestanden op het gehele binnentraject blijft bestaan, is het waargenomen oriëntatie-effect in de  $\{a\}_6 \leftrightarrow \{a\}_7$  botsingsdoorsnede gering. Voor de  $\{a\}_6$ -begintoestand is de energie bij de avoided-crossing groter dan voor de  $\{a\}_7$ -toestand, zodat bijdragen aan de  $\{a\}_6 \rightarrow \{a\}_7$  botsingsdoorsnede van nog grotere botsingsparameters afkomstig zijn. Inderdaad zien we voor deze  $\{a\}_6 \rightarrow \{a\}_7$  overgang reeds een omslaan van het polarisatieeffect (" $\Omega$ -inversie").
- Wat betreft de  $\{a\}_4 \leftrightarrow \{a\}_5$  overgangen, is de  $\{a\}_4 \leftrightarrow \{a\}_5$ -crossing volkomen equivalent aan de  $\{a\}_6 \leftrightarrow \{a\}_7$ -crossing en kan ook als vrijwel geïsoleerd beschouwd worden. Het ontbreken van "locking" op de  $\{a\}_5$  potentiaalcurve versterkt nog de  $\Omega$ -opmenging op het binnentraject. Oriëntatie-effecten zijn voor deze  $\{a\}_4 \leftrightarrow \{a\}_5$  overgang dan ook bijna geheel verdwenen. Door het kleine asymptotische energieverval tussen de  $\{a\}_4$ - en  $\{a\}_5$ -toestanden, vertonen de botsingsdoorsneden onderling ook nauwelijks verschillen.
- De  $\{a\}_{4,5} \leftrightarrow \{a\}_{6,7}$  overgangen die plaatsvinden via de meest naar binnen gelegen  $\{a\}_5 \leftrightarrow \{a\}_6$ -crossing dienen met het "multiple-curve-crossing" model te worden beschreven. Vanwege de hoge referentiesnelheid van

deze crossing spelen deze botsingen zich vooral bij kleine botsingsparameters af, zodat (mede gelet op het optreden van "locking" op alle behalve de  $\{\alpha\}_5$ -curve) in het algemeen redelijke oriëntatie-effecten zullen resteren. De meer naar buiten gelegen  $\{\alpha\}_4 \leftrightarrow \{\alpha\}_5$ - en  $\{\alpha\}_6 \leftrightarrow \{\alpha\}_7$ -crossings worden in dit geval bij voorkeur diabatisch doorlopen ("doorschieten"). Daarom zullen de  $\{\alpha\}_4 \leftrightarrow \{\alpha\}_7$  botsingsdoorsnedes het grootst zijn. Wederom verwachten we voor de  $\{\alpha\}_7 \rightarrow \{\alpha\}_4$  overgang een groter resterend oriëntatie-effect dan voor de  $\{\alpha\}_4 \rightarrow \{\alpha\}_7$  overgang. Zowel experimenteel als quantummechanisch wordt dit andermaal ondersteund.

De  $\{\alpha\}_4 \leftrightarrow \{\alpha\}_6$  en  $\{\alpha\}_5 \leftrightarrow \{\alpha\}_7$  overgangen zijn minder waarschijnlijk, doordat hierbij een "lage-snelheids"-crossing adiabatisch doorlopen dient te worden. Om dezelfde reden zijn de  $\{\alpha\}_5 \leftrightarrow \{\alpha\}_6$  overgangen het minst waarschijnlijk van al doordat zij zowel voor de  $\{\alpha\}_4 \leftrightarrow \{\alpha\}_5$ - als voor de  $\{\alpha\}_6 \leftrightarrow \{\alpha\}_7$ -crossing het adiabatische potentiaaloppervlak moeten volgen, wat bij hoge snelheden niet voor de hand ligt. In het licht van de kleine absolute waarden van deze botsingsdoorsnedes ( $< 1 \text{ \AA}^2$ ) mogen we van deze vereenvoudigde semiklassieke beschrijving geen perfecte overeenstemming met de quantummechanica eisen. De kwalitatieve overeenkomsten blijven echter groot, zelfs met betrekking tot de groottes van de oriëntatie-effecten.

#### 4.6. Oriëntatie-effecten in het systeem $\text{Ne}^{**}-\text{Ne}$

Het systeem  $\text{Ne}^{**}-\text{Ne}$  onderscheidt zich op enkele punten van het nauw verwante systeem  $\text{He}^{**}-\text{He}$ . Het feit dat de botsingspartners gelijke ladingen hebben geeft aanleiding tot ladingssymmetrie, zoals aangeduid in hoofdstuk 2.

Een extra symmetrie is aanwezig wanneer we speciaal het  $^{20}\text{Ne}^{**}-^{20}\text{Ne}$  systeem beschouwen, namelijk die als gevolg van kerngelijkheid. Deze laatste symmetrie speelt geen rol in het  $^{22}\text{Ne}^{**}-^{20}\text{Ne}$  geval. Het is zeer interessant na te gaan, of en, zo ja, in hoeverre deze symmetrieën het verloop van het botsingsproces beïnvloeden. Met dat doel zijn door ons voor beide systemen botsingsdoorsnedes en polarisatie-effecten gemeten.

Onze behandeling van het  $\text{Ne}^{**}\text{-Ne}$  systeem is noodgedwongen meer summier dan die van  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$ . Enerzijds zijn quantummechanische gekoppelde-kanalen berekeningen aan  $\text{Ne}^{**}\text{-Ne}$  vooralsnog onmogelijk door gebrek aan nauwkeurige potentiaal-informatie en doordat het gekoppelde-kanalen programma zelf er nog niet geschikt voor is. Anderzijds heeft ook voor een semiklassieke eerste-orde analyse, analoog aan die voor  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$ , de tijd ontbroken.

#### 4.6.1. Experimenteel

De metingen aan  $^{20}\text{Ne}^{**}\text{-Ne}$  botsingsprocessen gaan precies zo in hun werk als de beschreven  $^{20}\text{Ne}^{**}\text{-He}$  metingen. Voor metingen met de  $^{22}\text{Ne}^{**}$ -isotoop dient echter de laserfrequentie over ongeveer 1200 Mhz verstemd te worden, hetgeen juist een afzonderlijke studie van beide systemen mogelijk maakt. Dit levert voor het laser-stabilisatie systeem geen problemen op. Een onaangename bijkomstigheid is echter dat in natuurlijk Neon de verhouding van de isotopen ongeveer  $^{20}\text{Ne} : ^{22}\text{Ne} = 90 : 10$  bedraagt. Dit heeft tot consequentie dat alleen voor relatief sterke  $^{22}\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_k \rightarrow ^{22}\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_l$  overgangen de benodigde meettijd binnen de perken kan worden gehouden.

De met name interessante vergelijking tussen  $^{20}\text{Ne}^{**}\text{-Ne}$  en  $^{22}\text{Ne}^{**}\text{-Ne}$  botsingen is daarom niet altijd mogelijk. In de dwarsbundel laten  $^{20}\text{Ne}$  en  $^{22}\text{Ne}$  zich natuurlijk niet scheiden.

In de Fig. 4.9 ( $^{20}\text{Ne}^{**}\text{-Ne}$ ) en 4.10 ( $^{22}\text{Ne}^{**}\text{-Ne}$ ) wordt van een aantal vergelijkbare "polarisatie-metingen" het resultaat getoond. Het betreft de  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_{4,6,7}$  en  $\{\alpha\}_7 \rightarrow \{\alpha\}_6$  overgangen. De bijbehorende enkelgepolariseerde doorsnedes  $Q_{l \rightarrow k}^{M_k}$  staan met nog enige andere voor het  $^{20}\text{Ne}^{**}\text{-Ne}$  systeem opgevoerd in Tabel 4.6. De variatie in botsingsenergieën  $E$  is vooralsnog kleiner dan voor  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$  het geval was.

#### 4.6.2. Discussie

Bij een beschouwing van de in de vorige sectie gegeven resultaten voor de waargenomen oriëntatie-effecten vallen twee zaken direct in het oog.

overgang $\{\alpha\}_k \rightarrow \{\alpha\}_l$	$E_{cm}$ [meV]		$Q^{ 0 }$ [A <sup>2</sup> ]		$Q^{ 1 }$ [A <sup>2</sup> ]		$Q^{ 0 }/Q^{ 1 }$	
	Ne <sup>20</sup>	Ne <sup>22</sup>	Ne <sup>20</sup>	Ne <sup>22</sup>	Ne <sup>20</sup>	Ne <sup>22</sup>	Ne <sup>20</sup>	Ne <sup>22</sup>
5-→4	195	-	6.9	-	6.2	-	1.1	-
	215	-	6.8	-	6.2	-	1.1	-
	90	92	14.3	15.6	12.0	13.6	1.2	1.1
5-→6	120	122	0.39	0.45	0.19	0.22	2.1	2.0
	195	-	1.23	-	0.52	-	2.1	-
	230	-	1.36	-	0.66	-	2.1	-
5-→7	100	-	3.4	-	0.71	-	4.8	-
	122	124	4.2	4.6	0.98	0.85	4.2	5.4
	195	-	5.4	-	1.20	-	4.5	-
	215	-	5.5	-	1.60	-	3.4	-
7-→4	80	-	0.02	-	0.14	-	0.14	-
	110	-	0.04	-	0.29	-	0.14	-
	135	-	0.07	-	0.44	-	0.16	-
	190	-	0.20	-	1.07	-	0.19	-
	210	-	0.19	-	1.25	-	0.15	-
7-→5	80	-	0.07	-	0.04	-	1.8	-
	110	-	0.35	-	0.07	-	5.0	-
	135	-	0.53	-	0.08	-	6.6	-
	190	-	1.63	-	0.21	-	7.8	-
	210	-	1.77	-	0.23	-	7.7	-
7-→6	80	-	0.41	0.38	2.1	1.9	0.20	0.20
	95	-	0.74	0.93	2.7	2.7	0.27	0.34
	110	-	0.80	0.59	2.8	2.9	0.29	0.20
	135	-	0.81	-	3.0	-	0.27	-
	190	-	1.50	-	6.0	-	0.25	-
	210	-	1.60	-	6.1	-	0.26	-

Tabel 4.6. : Experimentele gepolariseerde werkzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{M_k}$   
voor  $^{20}\text{Ne}^{**}-\text{Ne}$  en  $^{22}\text{Ne}^{**}-\text{Ne}$ .

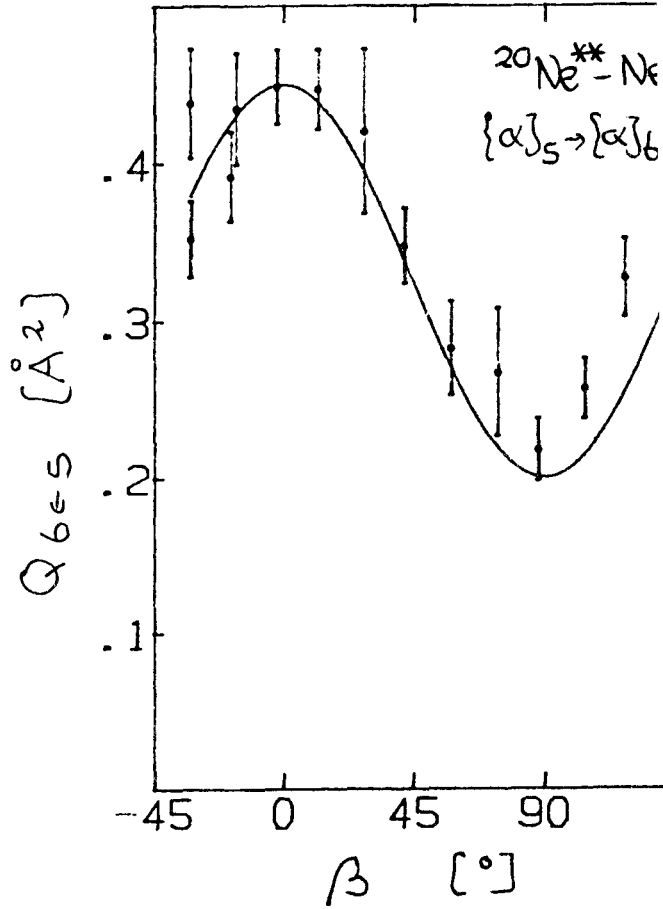
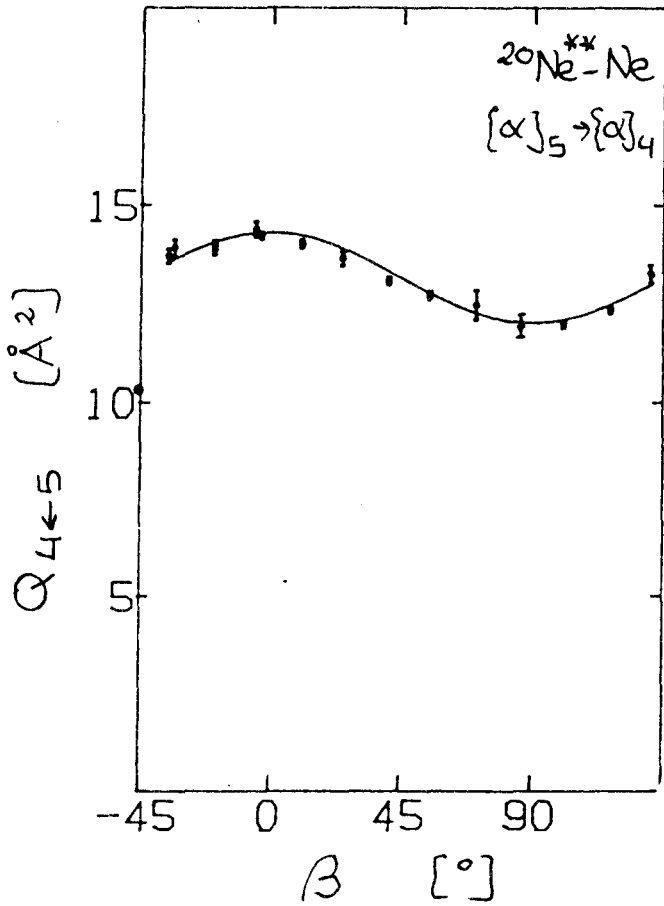
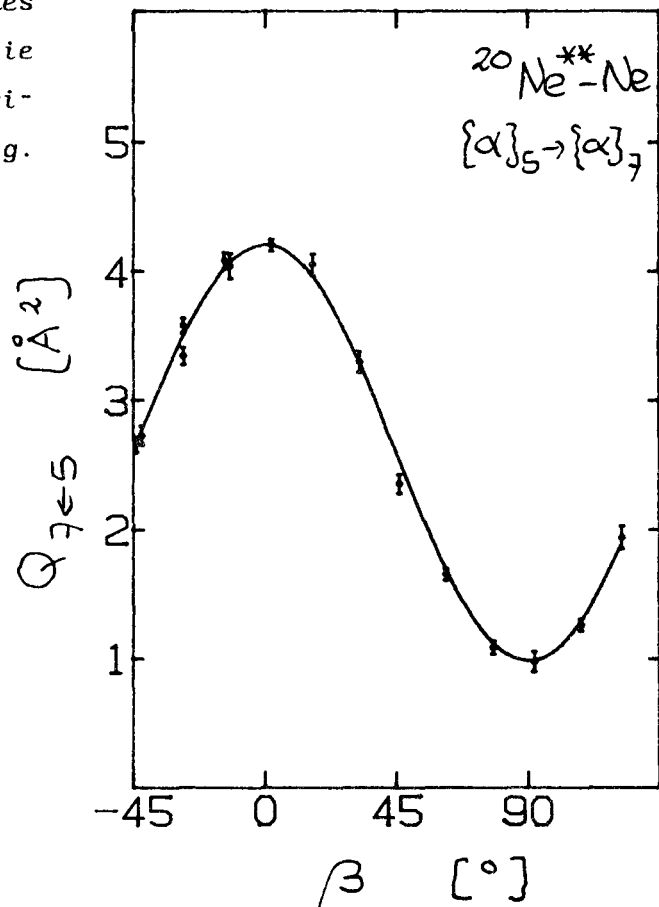


Fig.4.9. : Experimentele werkzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{\text{exp}}(\beta)$  voor  $^{20}\text{Ne}^{**} - \text{Ne}$ , als functie van de hoek  $\beta$  tussen de laserpolarisatie  $\vec{E}_p$  en de relatieve snelheid  $g$ . De fit-curve is conform Vgl.(4.4). ( $E \sim 125$  meV)





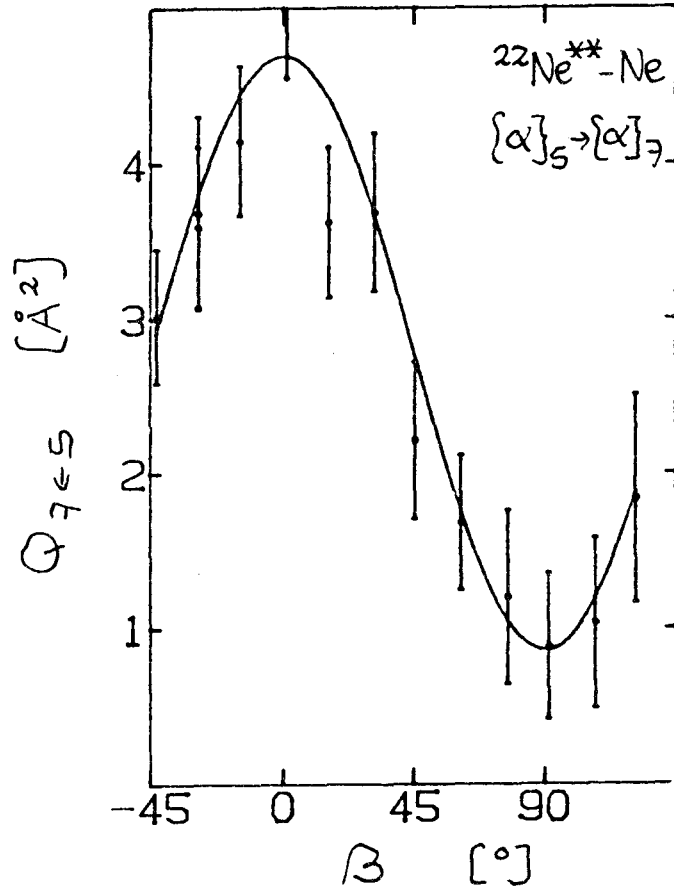
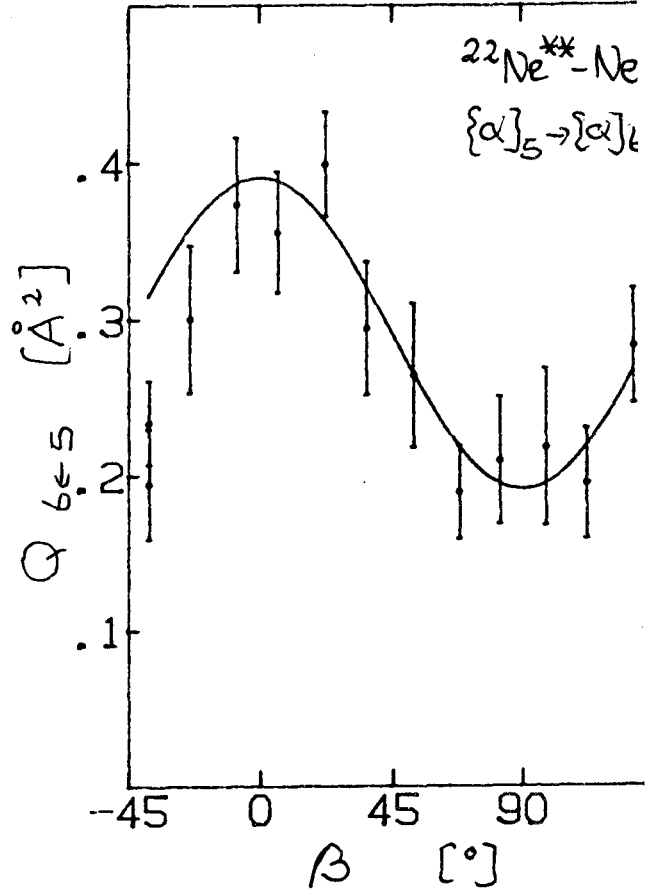
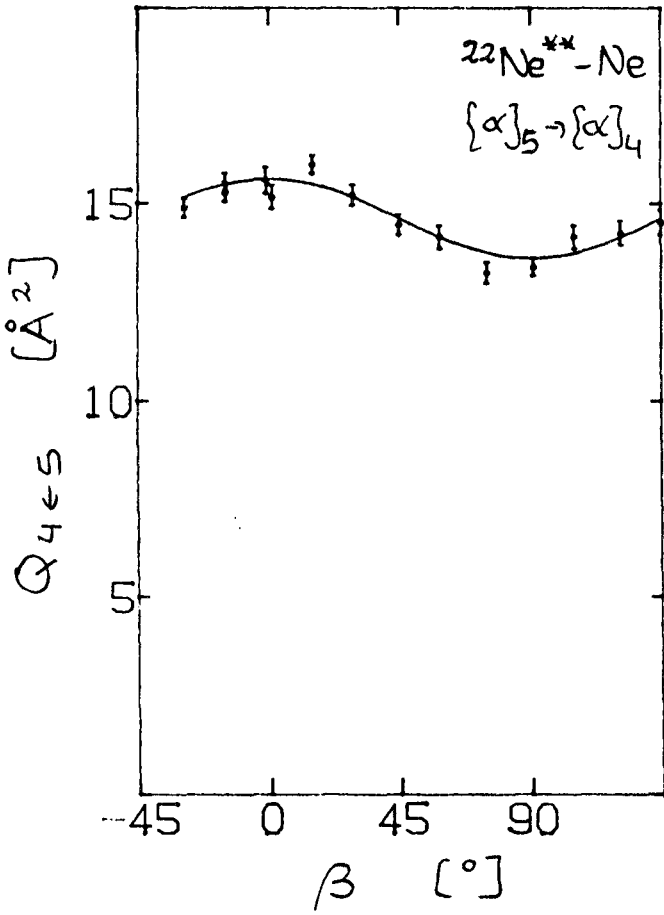


Fig.4.10. : Als Fig. 4.9, maar nu  
 voor  $^{22}\text{Ne}^{**} - \text{Ne}$ .

## Ne ↔ He

Om te beginnen wordt het algemene gedrag van het Ne<sup>\*\*</sup>-He systeem in de meeste gevallen redelijk dicht benaderd door dat van het Ne<sup>\*\*</sup>-Ne systeem. Dit geldt niet alleen voor de relatie tussen de enkel-gepolariseerde doorsnedes  $Q_{l \rightarrow k}^{M_k}$  voor één overgang, maar zelfs wat betreft de onderlinge grootte van de doorsnedes voor verschillende overgangen. We merken op dat, indien al van een trend sprake is, deze wijst in de richting van iets kleinere doorsnedes in het Ne<sup>\*\*</sup>-Ne geval. Een frappante uitzondering vormt de  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_6$  overgang, waarvoor het oriëntatie-effect voor het Ne<sup>\*\*</sup>-Ne systeem ( $Q^{0|0}/Q^{1|1} = 2$ ) omgekeerd is aan dat voor het Ne<sup>\*\*</sup>-He systeem (0.5). Dit laat de tentatieve conclusie toe dat de desbetreffende  $\{\alpha\}_{4,5,6,7}$  potentiaalcurves voor beide systemen een in grote lijnen soortgelijk gedrag zullen vertonen, in het bijzonder wat betreft het optreden van avoided crossings. Het is in dit verband het vermelden waard, dat de  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_6$  crossing voor Ne<sup>\*\*</sup>-He de meest naar binnen gelegen crossing is, en daardoor eerder een afwijkend gedrag zal vertonen.

In ieder geval wijst de overeenkomst tussen de Ne<sup>\*\*</sup>-Ne en Ne<sup>\*\*</sup>-He systemen niet in de richting van grote ladingssymmetrie-effecten, bij de beschouwde overgangen en botsingsenergieën. De gerade-ungerade splitsing tussen de adiabatische potentiaalcurven zal pas van belang worden voor kleinere internucleaire afstanden, dan wij nu bereiken. Het werk van Boom [B0087] wijst ook in die richting. Toekomstige metingen bij hogere botsingsenergieën kunnen misschien meer licht in deze zaak brengen.

<sup>20</sup>Ne<sup>\*\*</sup> ↔ <sup>22</sup>Ne<sup>\*\*</sup>

Tenminste zo interessant als de kennelijke overeenkomsten tussen de Ne<sup>\*\*</sup>-Ne/He wisselwerkingen, zijn die tussen de <sup>20</sup>Ne<sup>\*\*</sup>/<sup>22</sup>Ne<sup>\*\*</sup>-Ne wisselwerkingen. Binnen de grenzen van de meetnauwkeurigheid zijn tussen de desbetreffende doorsnedes geen verschillen waar te nemen! Dit geeft aan dat bij de bestudeerde overgangen voor thermische energieën ook de exchange-effecten te verwaarlozen zijn.

Dit alles zal in de toekomst nog nader onderzocht dienen te worden. Het wachten is daarbij ook op een volledige quantummechanische berekening, waarvoor het grondwerk al is verricht [B0087]. Op grond van de huidige bevindingen echter lijkt een eerste-orde semiklassieke berekening zeker perspectieven te bieden, bij veel geringer inspanning.

## HOOFDSTUK 5 : ENERGIEAFHANKELIJKHEID (I)

In het Minibundel-1 experiment beschikken we over twee methodes om de botsingsenergie te variëren. In de eerste plaats levert een verplaatsing van het botsingsvolume langs de hoofdbundel-as een andere relatieve snelheid van de botsende deeltjes op. Ten tweede kunnen we de hoofdbundelsnelheid verhogen door aan de  $\text{Ne}^*$ -hoofdbundel een lichter gas, bijvoorbeeld He, toe te voegen (men spreekt dan van een "seeded-beam").

In dit hoofdstuk staan we stil bij de energieafhankelijkheid van de botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$  voor overgangen binnen het kortlevende  $\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_{4,5,6,7}$ -multiplet. We doen dit voor de systemen  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$  en  $\text{Ne}^{**}\text{-Ne}$ . Bij dit alles laten we voorlopig de snelheidsverdeling van de bundeldeeltjes buiten beschouwing en werken over de gehele linie slechts met gemiddelde hoofd- en dwarsbundelsnelheden. Over looptijd-metingen, waarbij snelheidsopgelost wordt gemeten, zullen we het in het volgende hoofdstuk hebben. In het geval van  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$  worden de experimentele resultaten zoveel mogelijk vergeleken met de resultaten van quantummechanische en semiklassieke berekeningen. Voor  $\text{Ne}^{**}\text{-Ne}$  is dit jammer genoeg (nog) niet mogelijk.

### 5.1. Energieafhankelijkheid in het systeem $\text{Ne}^{**}\text{-He}$

#### 5.1.1. Experimenteel

Door een verplaatsing van de laserbundel langs de hoofdbundel-as kunnen we de ligging van het botsingsvolume ten opzichte van de uitstroomopening van de dwarsbundel variëren. Hiermee verandert de relatieve snelheid  $\vec{g}$  zowel van richting als van grootte. In Fig. 5.1 wordt dit aan de hand van Newton-diagrammen geïllustreerd.

Doordat we de laserbundel zeer nauwkeurig kunnen manipuleren met behulp van stappenmotor-gestuurde optische componenten in de bundellijn, vormt dit

een voor de hand liggende methode voor variatie van de botsingsenergie  $E_{\text{cm}} = \frac{1}{2} \mu g^2$ . Nadeel is echter dat het energiebereik beperkt wordt door de geringe afstanden waarover we het botsingsvolume kunnen verplaatsen (voor een hoofdbundel die voor 100% uit Ne bestaat, en een He-dwarsbundel, geldt bijvoorbeeld  $50 < E_{\text{cm}} < 110$  meV).

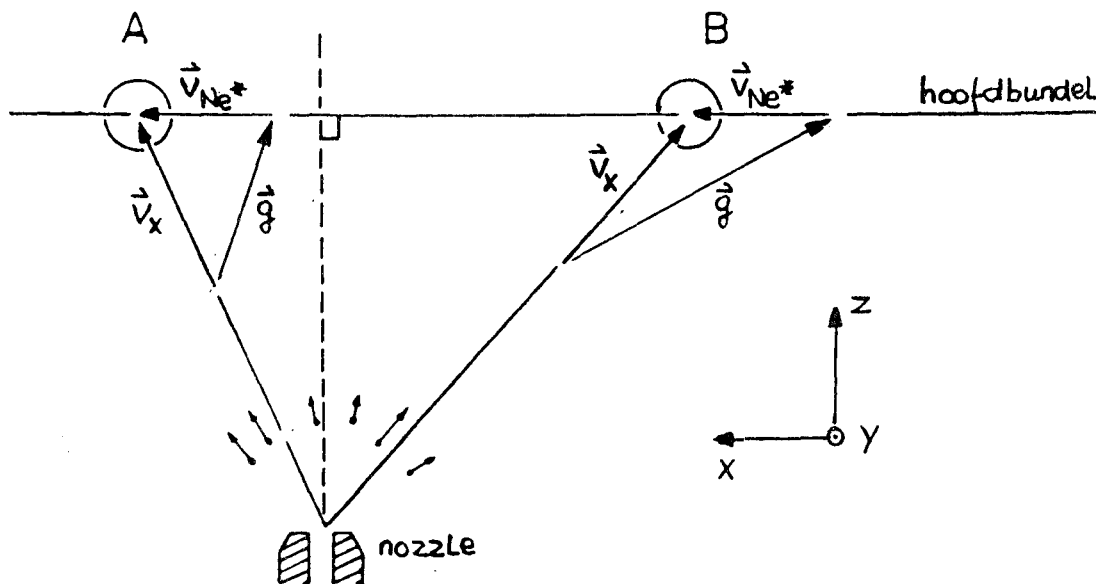


Fig. 5.1. : Newton-diagrammen voor het botsingsproces op twee verschillende posities.

Als tweede methode komt, zoals gezegd, het gebruik van een "seeded" hoofdbundel in aanmerking. Wij hebben gewerkt met een mengsel van 85% He en 15% Ne. In een dergelijke deeltjesbundel zullen de snellere He-atomen de Ne-atomen meeslepen, hetgeen resulteert in een hogere eindsnelheid van de metastabiele  $\text{Ne}^*$ -atomen. Deze bedraagt ongeveer  $v_{\text{Ne}^{**}} \approx 1500$  m/s, vergeleken met  $v_{\text{Ne}^{**}} \approx 1000$  m/s voor de ongemengde bundel. Ten gevolge van onder andere excitatie-overdrachtsreacties daalt de  $\text{Ne}^*\{^3\text{P}_{0,2}\}$ -intensiteit slechts met een factor 2 a 3 [JAC87].

De energieafhankelijkheden van botsingsdoorsnedes zijn gemeten voor alle overgangen vanuit de  $\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_5$ - en  $\{\alpha\}_7$ -begintoestanden. Dit is gebeurd door "energie-metingen" en/of "ijk-metingen" (zoals besproken in paragraaf 3.4). Uit vooraf verrichte "polarisatie-metingen" werden voor verschillende X-posities van de laserbundel de laser-polarisatierichtingen  $\vartheta_E$  bepaald,

waarvoor  $\vec{g} // \vec{E}_p$  ( $\beta = 0$ ) en  $\vec{g} \perp \vec{E}_p$  ( $\beta = \pi/2$ ). De betekenis van de gebruikte symbolen, die eerder al werden gedefinieerd in hoofdstuk 3, wordt verduidelijkt in Fig. 5.1. Tijdens een "energie-meting" of "ijk-meting" kan dan worden volstaan met de bepaling van de signaalverhouding  $I_l/I_k$  van botsinggeïnduceerde en directe fluorescentie voor slechts enkele laserpolarisatierichtingen rond de eerder genoemde. Dit maakt het mogelijk de gepolariseerde botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{0|0}$  en  $Q_{l \leftarrow k}^{1|1}$  voor verschillende botsingsenergieën of  $\{\alpha\}_k \rightarrow \{\alpha\}_l$ -overgangen snel achtereen te meten. Dit gaat natuurlijk alleen op voor overgangen vanuit een begintoestand  $\{\alpha\}_k$  met  $J_k = 1$ . De experimentele resultaten zijn weergegeven in Fig. 5.2 en werden reeds vermeld in Tabel 4.2. In de figuur staan tevens quantummechanische en semiklassieke doorsnedes ingetekend, die later nog aan de orde komen.

In deze figuur zien we dat alle botsingsdoorsnedes een stijgend gedrag vertonen als functie van de botsingsenergie. Voor de endotherme overgangen  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_4$  en  $\{\alpha\}_7 \rightarrow \{\alpha\}_{4,5,6}$  lijkt, zoals te verwachten was, een drempelwaarde voor de botsingsenergie te bestaan. Beneden deze drempelenergie zijn geen botsinggeïnduceerde overgangen mogelijk. Op het precieze verloop van de botsingsdoorsnede  $Q_{l \leftarrow k}(g)$  gaan we in de volgende paragraaf nader in, als we de resultaten van de semiklassieke beschrijving bespreken.

### 5.1.2. Quantummechanisch

Vanwege het veelomvattende en tijdrovende karakter van de gekoppeldekanalen berekeningen beschikken we slechts voor weinig verschillende botsingsenergieën over quantummechanisch berekende werkzame doorsnedes. In Tabel 4.2 waren deze eerder samengbracht. We herhalen nog eens, dat alle berekeningen de door ons naar het binnengebied  $R < 4.5 a_0$  geëxtrapoleerde input-potentialen van Hennecart [HENS2] gebruiken. Fig. 5.2 presenteert deels dezelfde resultaten op een andere manier. Zoals al opgemerkt bij de bespreking van de oriëntatie-effecten in hoofdstuk 4, is over het algemeen de overeenkomst tussen experiment en quantummechanica zonder meer goed te noemen.

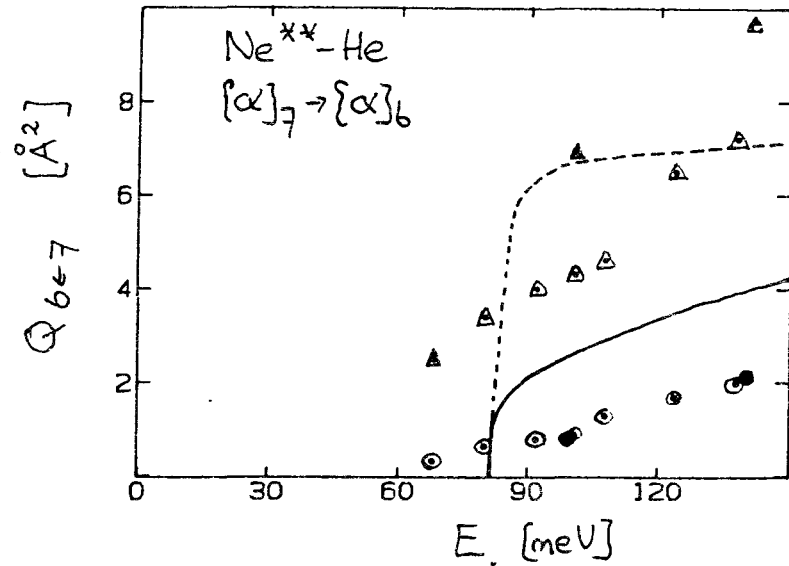
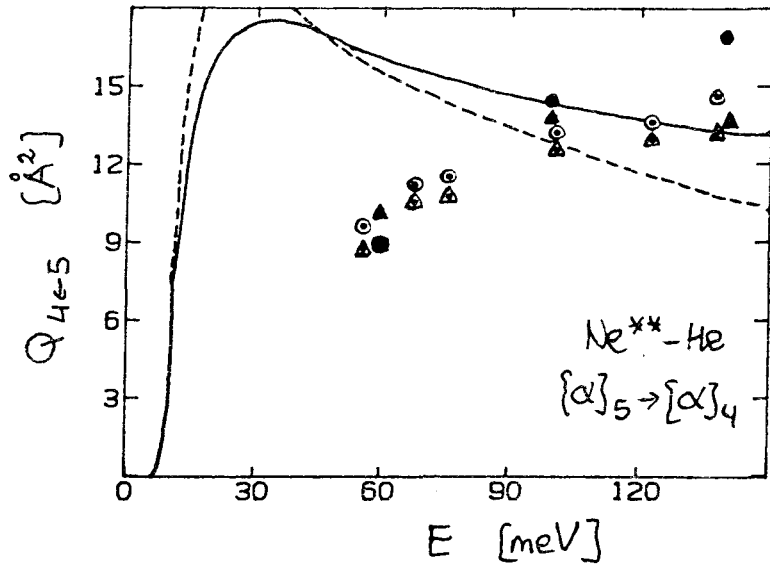
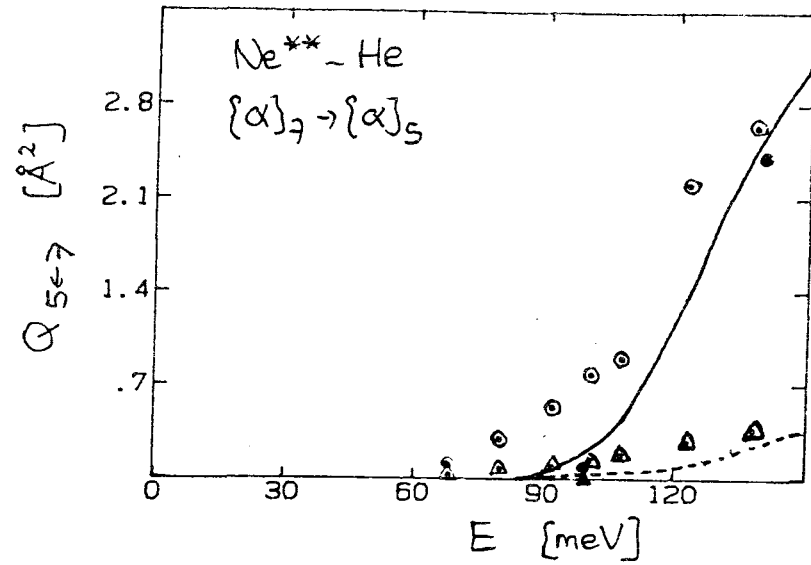
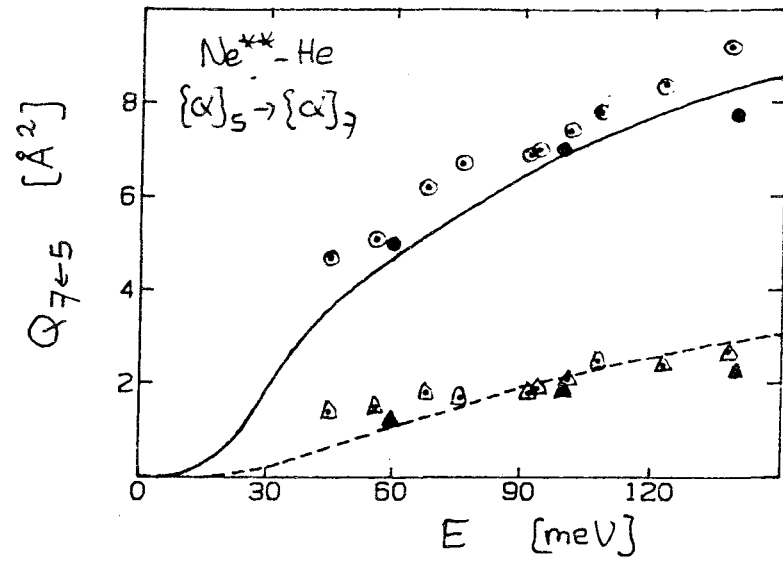


Fig. 5.2. : Snelheidsafhankelijkheden van gepolariseerde werkzame doorsnedes  $Q_{l←k}^{M_R}$  voor Ne<sup>\*\*</sup>-He.  
 $Q_{l←k}^{0|0}$  : ○ = EXP, ● = QM, — = SEM     $Q_{l←k}^{1|1}$  : △ = EXP, ▲ = QM, --- = SEM

### 5.1.3. Semiklassiek

Met behulp van de in hoofdstuk 2 ontwikkelde semiklassieke beschrijving van het botsingsproces kunnen we op zeer eenvoudige, en snelle, wijze de energieafhankelijkheid  $Q_{l \leftarrow k}(g)$  van de botsingsdoorsnede voor een bepaalde  $\{\alpha\}_k \rightarrow \{\alpha\}_l$ -overgang simuleren. De uitkomsten van de semiklassieke berekeningen, uitgaand van de crossing parameters van Tab. 4.3, zijn te zien in de eerder genoemde Fig. 5.2.

Vergelijken we nu de experimentele, quantummechanische en semiklassieke resultaten voor de energie-afhankelijkheid van de werkzame doorsnedes, dan constateren we, dat over het algemeen de overeenstemming goed te noemen is. Dezelfde conclusie was natuurlijk ook al getrokken in hoofdstuk 4, waar we ons op de oriëntatie-effecten concentreerden.

Alleen de  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_4$ -overgang valt wat dit betreft uit de toon. Waar zoals gezegd de quantummechanica het experiment goed beschrijft, heeft de semiklassieke berekening een opgaand in plaats van neerwaarts verloop van de doorsnede met de energie tot gevolg. Misschien dat bij een calibratie van de parameters van de betrokken avoided crossing op quantummechanische doorsnedes bij meerdere energiewaarden tegelijk de discrepantie minder groot zou zijn. Aan de andere kant lijkt de  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_4$ -overgang een voor de hand liggende kandidaat te zijn voor een additionele beschouwing binnen het kader van de semiklassieke Demkov-theorie van paragraaf 2.3. Hiernaar is verder onderzoek gewenst.

Het waargenomen drempelgedrag van de werkzame doorsnedes voor endotherme processen zou misschien onzekerheid kunnen doen opkomen over de calibratie van de energie-schaal. Immers, ook beneden de veronderstelde energiedrempel blijken nog overgangen plaats te vinden. Hoewel een zekere systematische fout in de energie niet uit te sluiten valt, kan een verklaring ongetwijfeld deels gevonden worden in het feit dat in de figuren alleen de gemiddelde botsingsenergie is uitgezet. De energie-spreiding, als gevolg van de snelheidsverdelingen van hoofd- en dwarsbundel-deeltjes en tevens van de ruimtelijke uitgebreidheid van het botsingsvolume, maakt dat de huidige metingen met name het drempelgedrag vertekend weergeven. De berekende energie-spreiding van  $\Delta E \approx 30$  meV, gebaseerd op Gaussische snelheidsverdelingen, komt inderdaad ruwweg overeen met de waargenomen verschuiving van de drempelenergie. In een later stadium kunnen misschien de nodige invouw-effecten rechtstreeks in rekening worden gebracht.

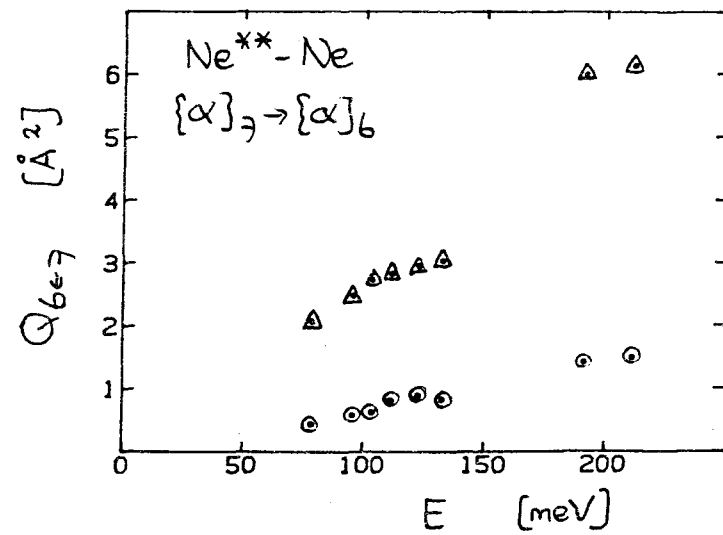
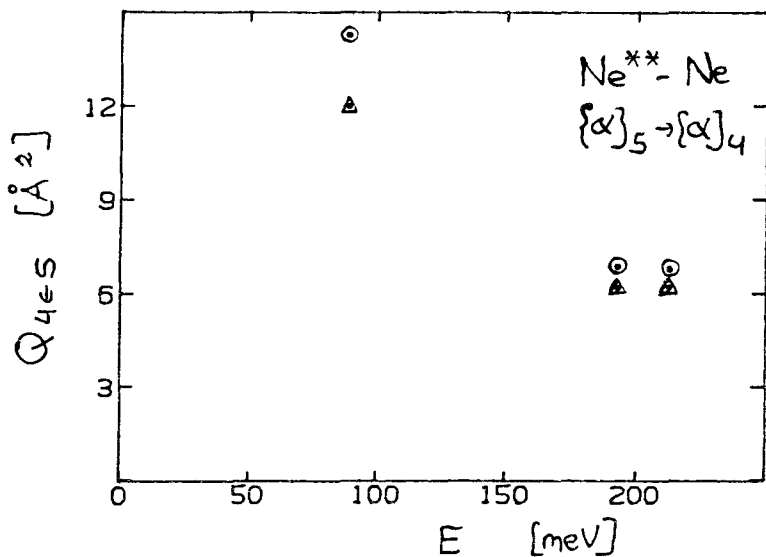
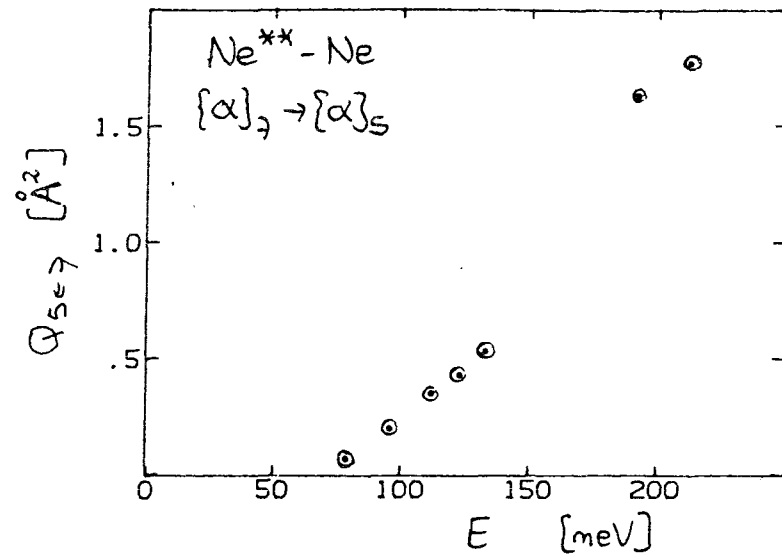
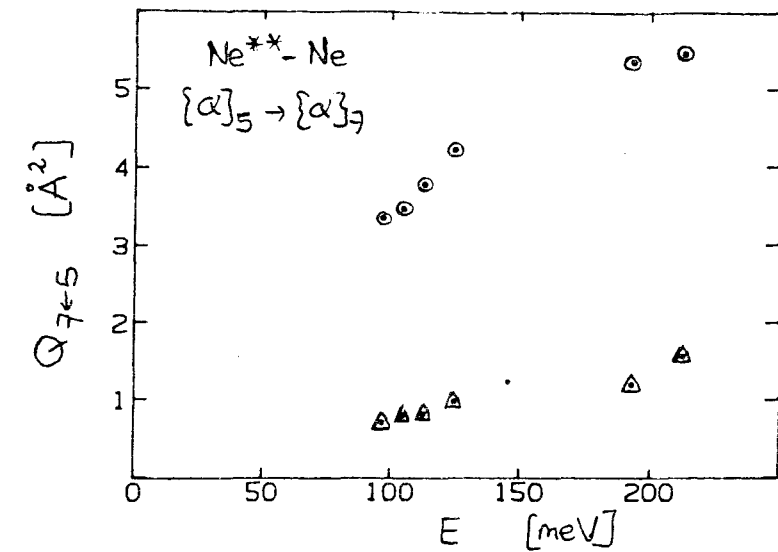


Fig. 5.3. : Snelheidsafhankelijkheden van gepolariseerde werkzame doorsnedes  $Q_{l←k}^{M_k}$  voor Ne<sup>\*\*</sup>-Ne.

$Q_{l←k}^{0|0}$  : ○ = EXP       $Q_{l←k}^{1|1}$  : △ = EXP



## 5.2. Energieafhankelijkheid in het systeem $\text{Ne}^{**}-\text{Ne}$

### 5.2.1. Experimenteel

Voor de metingen, gedaan aan het systeem  $\text{Ne}^{**}-\text{Ne}$ , geldt onverkort wat over de overeenkomstige metingen aan  $\text{Ne}^{**}-\text{He}$  is gezegd. We tonen de resulterende werkzame doorsnedes als functie van de energie in Fig. 5.3. Zij staan ook in Tabel 4.6.

### 5.2.2. Discussie

Om dezelfde redenen als zijn genoemd in hoofdstuk 4 bij de bespreking van oriëntatie-effecten, ontbreekt het ons in het  $\text{Ne}^{**}-\text{Ne}$  geval aan quantummechanisch en semiklassiek vergelijkingsmateriaal. Ook de in vergelijking met het  $\text{Ne}^{**}-\text{He}$  geval geringere hoeveelheid meetdata laat slechts voorlopige conclusies toe.

De opmerkingen, gemaakt in hoofdstuk 4, over de globale overeenkomst van het  $\text{Ne}^{**}-\text{Ne}$  met het  $\text{Ne}^{**}-\text{He}$  systeem behouden hun algemene geldigheid. Toch lijkt hier, opmerkelijk genoeg, sprake van een enigszins verschillende energie-afhankelijkheid, zoals af te lezen valt uit de Fign 5.2 en 5.3. De eerder gesuggereerde  $Q(E) \sim E$  en  $Q(E) \sim \sqrt{E}$  afhankelijkheden voor respectievelijk  $\text{Ne}^{**}-\text{Ne}$  en  $\text{Ne}^{**}-\text{He}$  doorsnedes [DRI85] zijn echter een oversimplificatie.

Van eventuele verschillen tussen de  $^{20}\text{Ne}^{**}-\text{Ne}$  en  $^{22}\text{Ne}^{**}-\text{Ne}$  systemen is, rekening houdend met de meet-onnauwkeurigheid, zelfs bij de hoogste energieën ( $E \approx 200$  meV) nog steeds niets waar te nemen.

## HOOFDSTUK 6. ENERGIE-AFHANKELIJKHEID (II): TOF-METINGEN

Time-Of-Flight (TOF)- of looptijd-metingen maken het mogelijk het  $\text{Ne}^{**}\text{-X}$  botsingsproces van Vgl. (1.1) te bestuderen als functie van de botsingsenergie, in meer detail dan de in het voorgaande hoofdstuk beschreven meettechnieken toelaten. Dit soort experimenten is gebaseerd op een periodieke modulatie van de dichtheid van één van de botsingspartners in het botsingsvolume, in ons geval de  $\text{Ne}^*$ -hoofdbundeldeeltjes. Daartoe is een relatief lange looptijd van deze deeltjes (vanaf het punt van ontstaan tot het botsingsvolume) vereist. Afhankelijk van hun snelheid worden de deeltjes, of liever gezegd de reactieproducten die ze vrijmaken ter plaatse van het botsingsvolume, gedetecteerd in verschillende tijdkanalen van een zogenaamde multiscaler.

De compacte afmetingen van het Minibundel-1 apparaat stellen zware eisen aan de hierbij te gebruiken technieken en apparatuur. Alvorens hierover meer te zeggen, staan we voor de volledigheid even stil bij de theorie van looptijdmetingen. Verder zij verwezen naar bijvoorbeeld [BEY72, GER86].

### 6.1. Theorie van looptijdmetingen

#### **Looptijdverdeling**

De hoofdbundeldeeltjes worden geproduceerd met een snelheidsverdeling  $P(v)$  en hebben een deeltjesstroom in het experimenteerpunt  $I_0$  ( $\text{s}^{-1}$ ). De snelheidsverdeling van deze deeltjes kan worden bepaald door de looptijd  $t_f$  te meten, waarin ze een bepaalde looplengte  $L$  afleggen:  $L = v/t_f$ . Wanneer op  $t=0$  gedurende een tijd  $t_b$  een "burst" van deeltjes wordt doorgelaten, dan is het looptijd-signaal  $X_k$ , dwz. het aantal deeltjes dat in tijdkanaal  $k$  van de multiscaler gedetecteerd wordt, gelijk aan

$$S_k = t_b I_0 S_k \quad (6.1)$$

waarbij  $s_k$  de kans is dat een deeltje voor het bereiken van het botsingsvolume een tijd van  $k$  kanaaltijden  $\tau_k$  nodig heeft. In de praktijk wordt de looptijd  $t_f$  gedefinieerd door :

$$t_f(k) = (k + \frac{1}{2}) \tau_k + t_0 \quad (6.2)$$

Via het gemiddelde vertrektijdstip  $-t_0$  wordt gecorrigeerd voor vertragingstijden in het systeem.

In het algemeen laten we met behulp van een chopper per periode van  $N$  tijdkanalen  $\tau_k$  een of meerdere "bursts" door, elk met een breedte  $t_b$ . We nemen aan, dat elk deeltje in één van de kanalen  $k=1$  t/m  $N$  terecht komt. De zogenaamde chopperfunctie  $F_k$  definiëren we met behulp van een reeks  $R_k$ , met termen gelijk aan  $-1$  of  $+1$ :

$$F_k = F_{k+nN} = \frac{1}{2} (R_k + 1) = \begin{cases} 1 & : \text{bundel aan} \\ 0 & : \text{bundel uit} \end{cases} \quad (6.3)$$

Indien we nu het aantal achtergrondpulsen dat in een tijdskanaal  $k$  wordt geteld definiëren als  $B$ , dan kunnen we voor een gemeten verdeling van deeltjes, geaccumuleerd over  $M$  meetslagen van de multiscaler, schrijven :

$$X_k = M \sum_{j=1}^N F_{k-j+1} S_j + M \cdot B \quad (6.4)$$

Hierin wordt gesommeerd over alle deeltjes met een looptijd  $j \cdot \tau_k$  die op een tijdstip  $(k-j+1) \cdot \tau_k$  vertrekken bij de chopper om in het tijdskanaal  $k$  in het botsingsvolume aan te komen.

Naar de vorm van de chopperfunctie  $F$  kunnen we twee types van looptijdmetingen onderscheiden, namelijk de "single-burst"- en de "pseudo-random-correlatie"-methode.

### Single-Burst Methode

Bij de single-burst methode wordt de chopperfunctie  $F$  gegeven door:

$$F(t) = \begin{cases} 1 & \text{voor } (t_0 - \frac{1}{2} t_b) \leq t \leq (t_0 + \frac{1}{2} t_b) \\ 0 & \text{elders} \end{cases} \quad (6.5)$$

Per periode van  $N$  tijdkanalen  $\tau_k$  is er dus precies één aaneengesloten "burst" van deeltjes doorgelaten, zodat de gemeten verdeling  $X$  wordt :

$$X_k = M \cdot S_k + M \cdot B \quad (6.6)$$

Hieruit kan de gezochte looptijdverdeling  $S$  rechtstreeks bepaald worden. Voor de statistische fout  $\sigma_{sb}^2(k)$  van deze verdeling (Poisson) en voor de relatieve onnauwkeurigheid  $\epsilon_{sb}^2(k)$  per tijdkanaal  $k$  gelden de eenvoudig af te leiden relaties :

$$\sigma_{X^2}(k) = X_k \quad (6.7)$$

$$\epsilon_{sb}^2(k) = \frac{\sigma_X^2(k)}{(MS_k)^2} = \frac{1}{MS_k} \left(1 + \frac{B}{S_k}\right) \quad (6.8)$$

De single-burst methode heeft als nadeel dat de open fractie  $t_b / N\tau_k$  zeer klein is. De methode blijkt zeer aantrekkelijk voor hoge deeltjesstromen  $I$  en brede snelheidsverdelingen  $P(v)$ .

#### **Pseudo-Random-Correlatie Methode**

Bij de pseudo-random-correlatie methode wordt de chopperfunctie gegeven door Vgl.(6.3), waarbij  $R$  een pseudo-random reeks is. Dat is een stochastische rij (in ons geval een maximum-lengte-reeks) met een oneven aantal  $N$  elementen. Daarvan zijn er  $\frac{1}{2}(N+1)$  gelijk aan 1 (open kanalen) en de rest gelijk aan -1 (gesloten kanalen). Voor de autocorrelatie van deze reeks en voor de verwachtingswaarde van  $R_k$  valt af te leiden [WIL70] dat:

$$\langle R_{k+j} R_j \rangle = \begin{cases} 1 & \text{voor } k = nN \quad n = 0, 1, 2, \dots \\ \frac{1}{N} & \text{voor } k \neq nN \end{cases} \quad (6.9)$$

$$\langle R_k \rangle = -\frac{1}{N} \quad (6.10)$$

Het in een tijdkanaal  $k$  gemeten signaal  $X_k$  kunnen we analoog aan Vgl.(6.6) schrijven als :

$$X_k = \frac{1}{2} M \sum_{j=1}^N R_{k-j+1} S_j + \frac{1}{2} M (B + \sum_{j=1}^N S_j) \quad (6.11)$$

Om de looptijdverdeling  $S$  te berekenen moeten we het gemeten signaal kruiscorreleren met de pseudo-random reeks  $R$  die eraan ten grondslag ligt. Dit levert de kruiscorrelatiefunctie  $C$  waarin, anders dan in het gemeten signaal,  $S$  weer te herkennen valt.

$$C_k = \sum_{l=1}^N R_l X_{l+k-1} = \frac{1}{2} M (N+1) S_k - M(B + \sum_{j=1}^N S_j) \quad (6.12)$$

Voor de statistische fout  $\sigma_{pr}^2$  in de verdeling  $C_k$ , die voor elk tijdkanaal hetzelfde is, en voor de relatieve fout  $\epsilon_{pr}^2(k)$  kan men afleiden [GER86] :

$$\sigma_{pr}^2 = \sum_{j=1}^N X_j = \frac{1}{2} (N+1) N \langle S_k \rangle + MNB \quad (6.13)$$

$$\epsilon_{pr}^2 = \frac{\sigma_c^2}{\{\frac{1}{2}M (N+1) S_k\}^2} \approx \frac{1}{MS_k} \left\{ 2 \frac{\langle S_k \rangle}{S_k} + \frac{4}{N} \frac{B}{S_k} \right\} \quad (6.14)$$

met  $\langle S_k \rangle$  het gemiddelde per kanaal van de discrete looptijdverdeling  $S$ .

De pseudo-random-correlatie methode heeft als voornaamste voordeel dat het aantal open tijdkanalen verhoudingsgewijs zeer groot is. Deze methode werpt vruchten af, indien het achtergrondsignaal  $B$  groot is, of indien het looptijdsignaal  $S_k$  in de belangrijke tijdkanalen meer dan tweemaal het gemiddelde signaal  $\langle S_k \rangle$  bedraagt. Dit is bijvoorbeeld het geval bij zeer smalle snelheidsverdelingen.

### Snelheidsverdeling

De snelheid  $v_k$  van deeltjes, die in een tijdkanaal  $k$  gedetecteerd worden, hangt direct samen met de looptijd  $t_f = (k+1/2) \tau_k - t_0$ , via de looplengte  $L$  :

$$v_k = L/t_k \quad (6.15)$$

Gekoppeld aan een snelheidsverdeling  $P(v)$  is daarom een looptijd-verdeling  $P(t)$ , zodanig dat  $P(v)dv = P(t)dt$ ; met andere woorden

De snelheidsverdeling van een supersone expansie is in principe gaussisch,  $P(v) \sim \exp\{-[(v/u-1)*S]^{**2}\}$  [DRI85]. Echter, met name voor lage waarden van de speedratio  $S$  moeten correctietermen worden meegenomen, die de Hermite-polynomen van orde drie en hoger bevatten [BEY83].

## 6.2. TOF-metingen in de Minibundel-1 opstelling

In de Minibundel-1 opstelling leggen de metastabiele hoofdbundel-atomen slechts een kleine afstand ( $\pm 90$  mm) af van de bron naar het botsingsvolume. Teneinde een goed oplossend vermogen van 0.5 tot 5 % voor de deeltjessnelheden te verkrijgen zijn daarom bij TOF-metingen kanaaltijden van 0.5 tot 5  $\mu$ s vereist (immers  $dv/v = L/v dt$ ). De meestal gebruikte mechanische choppers zijn vanwege de hiermee samenhangende hoge draaisnelheden niet te gebruiken. Ook gaat gebruik van een mechanische chopper bij toepassing van de pseudo-random-correlatie-methode gepaard met grote synchronisatie-problemen. Een alternatief vormt modulatie met behulp van een zogenaamde "laser-chopper". Dit zal worden uitgelegd aan de hand van het in Fig. 6.1 geschetste principe-schema.

Van de laserbundel, die in het botsingsvolume voor de productie van kortlevende  $Ne^{**}$ -atomen zorgdraagt, wordt in een vroeg stadium een tweede laserbundel afgesplitst. Deze laatste wordt, via een optisch fiber, in de opstelling direct achter de uitstroomopening van de metastabielen-bron (op  $\pm 2$  mm) loodrecht op de hoofdbundel geschoten (punt C in Fig. 6.1). Met deze "chopper"-laserbundel (met een typisch vermogen van  $\pm 0.5$  mW), mits afgestemd op de juiste  $Ne^*\{^3P_{0,2}\} \rightarrow Ne^{**}\{\alpha_k\}$  overgangsfrequentie, kunnen we een metastabiele  $Ne^*\{^3P_{0,2}\}$ -toestand zeer effectief leegpompen. In dat geval zullen in het botsingsvolume (punt B) nauwelijks nog enige  $Ne^*\{^3P_{0,2}\}$ -atomen aankomen, zodat daar geen laser-excitatie en botsinggeïnduceerde overgangen meer kunnen plaatsvinden. Met behulp van een elektro-optisch kristal en een polarisatiefilter [VLU81] kunnen we deze "chopper"-laserbundel zeer snel (met frequenties tot  $\pm 2$  MHz) "aan" cq "uit" zetten. Dit komt neer op het "uit" cq "aan" zetten van de hoofdbundel. Bij een periodieke modulatie van de hoofdbundel met deze "laser-chopper" bereiken steeds pakketjes metastabiele  $Ne^*$ -atomen het

botsingsvolume, waar ze door de "excitatie"-laserbundel naar een kortlevende  $\text{Ne}^{**}\{\alpha_k\}$ -toestand geëxciteerd kunnen worden. Door nu de directe dan wel botsinggeïnduceerde fluorescentie te meten als functie van de tijd kunnen we het botsingsproces van Vgl.(1.1) naar de hoofdbundelsnelheid opgelost bestuderen.

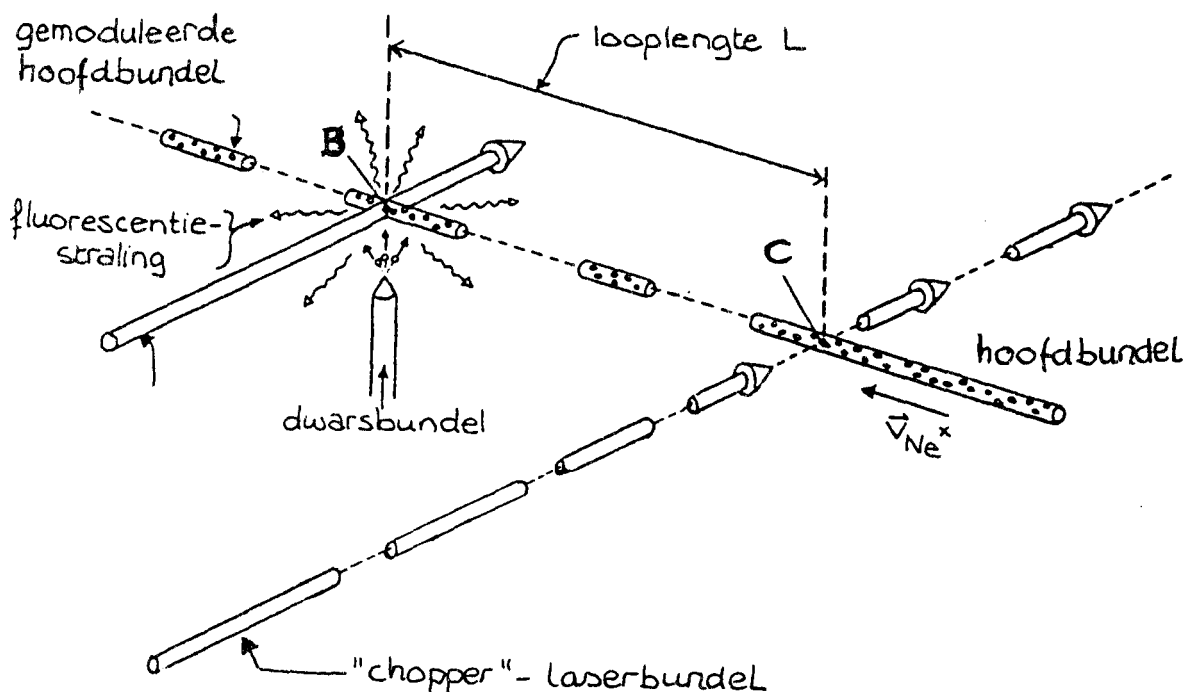


Fig. 6.1. : Principe-schema van de "laser-chopper"

De multiscaler (met een kleinste kanaaltijd  $\tau_k = 500$  ns) [GER86] bevat in zijn geheugen een "voor-geprogrammeerde" pseudo-random- of single-burst-reeks. Deze wordt als een reeks spanningspulsen toegevoerd aan de elektro-optische modulator, zodat we de "chopper"-laserbundel, en daarmee de hoofdbundel, periodiek kunnen moduleren. De fluorescentiesignalen worden met behulp van een photomultiplier geaccumuleerd in de tijdkanalen van de multiscaler. Op deze manier is een nauwkeurige synchronisatie van de vertrek- en aankomst-tijden van de metastabiele  $\text{Ne}^*$ -atomen mogelijk. De vertragingstijd  $-t_0$  uit Vgl.(6.2) bevat de vertragingstijden van de verschillende componenten in het choppersysteem (multiscaler, versterkers, elektro-optische modulator etc.).

Aan een drietal punten moet zorgvuldig aandacht worden besteed bij het gebruik van de pseudo-random-correlatie methode :

- 1 De periode  $T = N \tau_k$  van de multiscaler moet voldoende groot zijn, zodat het snelheidsspectrum niet verstoord wordt door langzame deeltjes die in de hoge-snelheids kanalen van een volgende chopper-periode gedetecteerd worden.
- 2 Afzonderlijke chopper-bursts mogen elkaar niet overlappen.
- 3 De chopper-bursts moeten binnen één tijdkanaal vallen.

### 6.3. TOF Snelheidsmetingen

Met behulp van de hierboven beschreven technieken is het mogelijk om de snelheidsverdeling van de hoofdbundeldeeltjes experimenteel te bepalen. Bij de beschrijving van het botsingsproces in paragraaf 3.4 bleek deze hoofdbundelsnelheid reeds van groot belang.

De verdeling van het directe fluorescentiesignaal in de tijd is een directe maat voor het op elk moment in het botsingsvolume aanwezige aantal metastabiele  $Ne^* \{^3P_{0,2}\}$ -atomen. Immers, het stralingsverval van de door laserexcitatie gevormde  $Ne^{**} \{\alpha_k\}$ -atomen gebeurt zowel zonder vertraging. Bij looptijd-metingen valt uit dit fluorescentiesignaal dan ook rechtstreeks de snelheidsverdeling van de hoofdbundeldeeltjes te destilleren. Tijdens dit werk zijn de snelheidsverdelingen bepaald van zowel de onvermengde Ne hoofdbundel (100 % Ne) als voor een seeded Ne/He hoofdbundel (15 % Ne / 85 % He). Dit alles bij de in het experiment gebruikelijke inlaatdrukken van de metastabielen-bron. De metingen zijn gedaan voor verschillende kanaaltijden  $\tau_k$ , volgens de pseudo-random-correlatie methode ( $\tau_k = 5 \mu s$ ) en volgens de single-burst methode ( $\tau_k = 2,1 \mu s$ ). In Fig. 6.2 zijn enkele gemeten looptijdverdelingen weergegeven.

De looptijdverdelingen zijn aangepast aan een supersone snelheidsverdeling [BEY81, BEY83] voor de deeltjesdichtheid :

$$N(v) = \text{constante} \cdot e^{-\left(\frac{v-u}{\alpha}\right)^2} \quad (6.16)$$



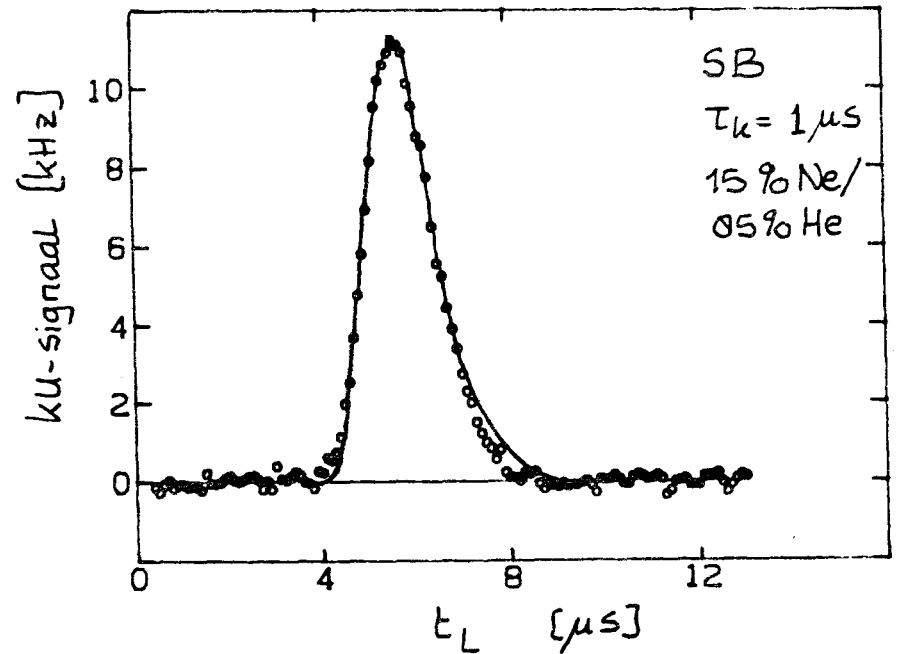
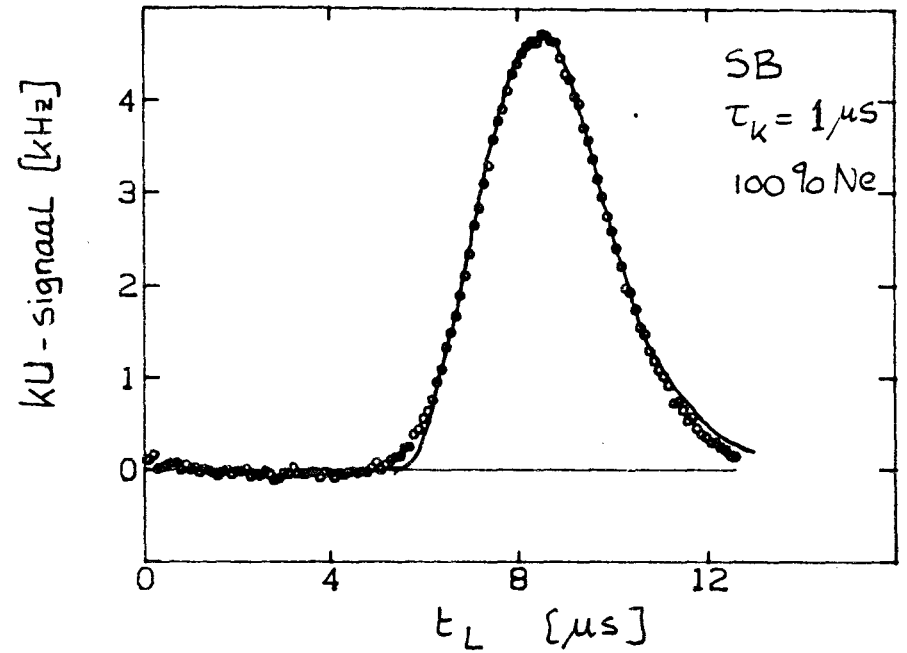
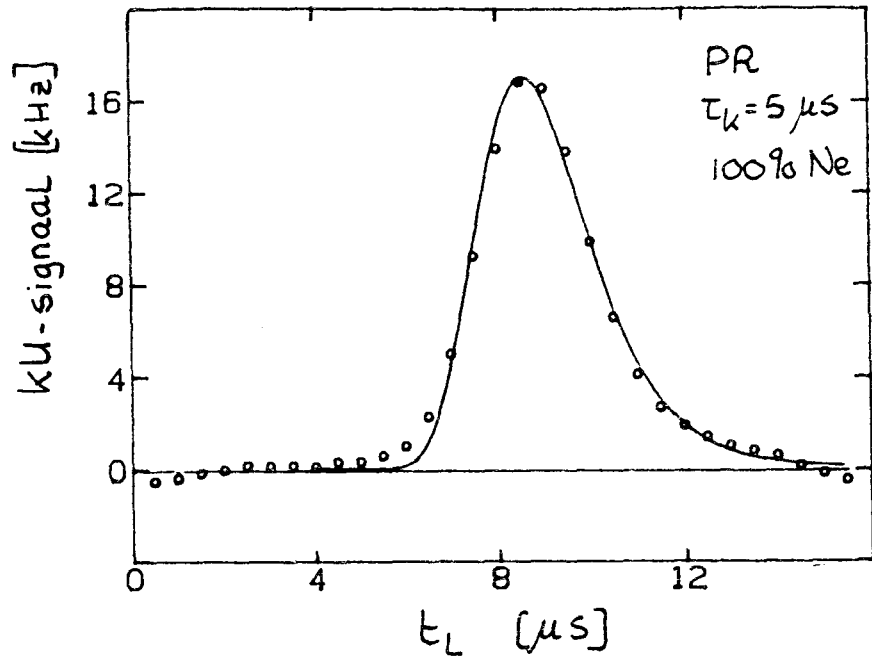


Fig. 6.2. : Looptijdspectra, gemeten door detectie van directe fluorescentie-straling met de single-burst (SB) en pseudo-random-correlatie (PR) methode. De getrokken curven zijn het resultaat van fits aan de snelheidsverdeling, zoals beschreven in de tekst.

met  $u$  de gemiddelde deeltjessnelheid en  $\mathcal{S}$  de "speedratio" (de snelheids-spreiding  $\alpha$  volgt hieruit via  $\alpha = \mathcal{S}/u$ ). De fitresultaten, verkregen onder meename van Hermite-polynoom-correcties van de orde 3 en 4, zijn vermeld in Tabel 6.1.

hoofdbundel	TOF-methode	$\tau_k$ [ $\mu\text{s}$ ]	$u$ [m/s]	$\mathcal{S}=u/\alpha$	$\alpha$ [m/s]
100% Ne	PR	5.0	965 (20)	4.8 (0.1)	201 (10)
100% Ne	SB	2.0	985 (15)	4.70 (0.06)	210 (6)
100% Ne	SB	1.0	1010 (10)	4.68 (0.04)	215 (4)
15% Ne / 85% He	SB	2.0	1480 (20)	5.7 (0.1)	260 (8)
15% Ne / 85% He	SB	1.0	1495 (30)	5.7 (0.2)	260 (15)

Tabel 6.1. : Eindsnelheid  $u$ , snelheidsspreiding  $\alpha$  en "speed-ratio"  $\mathcal{S} = u/\alpha$  voor 100% Ne en 85% He / 15% Ne bundels, zoals bepaald uit looptijdmetingen.

Op grond van een vereenvoudigde theorie van supersone expansies [DRI85] verwachten we speedratios  $\mathcal{S} = 5.9$  voor een 100% Ne bundel en  $\mathcal{S} = 10.8$  voor een bundel met 15% Ne en 85% He. De overeenstemming met het experiment is wat dit betreft zeker niet volmaakt. De theorie van supersone expansies vormt echter niet het onderwerp van dit werk. In de nabije toekomst verschijnt over de snelheidsverdeling van de metastabielen-bron een verslag [JAC87].

#### 6.4. TOF-metingen van Botsingsdoorsnedes

De TOF-techniek biedt, zoals gezegd, de mogelijkheid om het  $\text{Ne}^{**}\text{-X}$  botsingsproces te bestuderen als functie van de botsingsenergie  $E_{\text{cm}} = \frac{1}{2} \mu g^2$ .

In vergelijking met de tot op heden in het Minibundel-1 experiment gebruikte methode van verandering van de relatieve snelheid  $g$  door verplaatsing van het botsingsvolume (hoofdstuk 5), verwachten we van TOF-metingen meer gedetailleerde en nauwkeurige informatie over de energieafhankelijkheid van botsingsdoorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$ .

De signaalverhouding  $I_l/I_k$  meten we door de afzonderlijke meetsignalen KU, KA, LU en LA van hoofdstuk 3 te bepalen als functie van de looptijd van de hoofdbundeldeeltes. Een groot voordeel van de TOF-metingen is dat we nu ter bepaling van de achtergrondstraling niet met een verstemde laser behoeven te werken, maar de laser eenvoudigweg uit kunnen zetten. De chopper-periode wordt zo groot gekozen dat de achtergrond rechtstreeks uit de looptijd-spectra kan worden afgeleid.

Evenals voor de "polarisatie-metingen" en "ijk-metingen" is ook voor deze looptijd-metingen een volledig geautomatiseerd meetprogramma ontwikkeld. Wat betreft de te volgen meetstrategieën gelden de in paragraaf 3.4 beschreven overwegingen. In het algemeen meten we de experimentele signalen KU, KA, LU en LA bij een vaste laser-polarisatierichting  $\vec{E}_p$ , loodrecht op cq evenwijdig aan de asymptotische relatieve snelheid ( $\beta = \pi/2$  cq  $\beta = 0$ ). Ter illustratie is in Fig. 6.3 een volledige serie meetresultaten weergegeven.

De verschillende looptijdverdelingen kunnen we via Vgl. (3.7) verwerken tot een looptijdverdeling van de voor ons interessante signaalverhouding  $I_l/I_k$ . Ook de snelheidsafhankelijkheid van de verzwakking  $T_k$  van de hoofdbundel door de dwarsbundel kunnen we aldus bepalen uit het quotiënt  $KA/KU$  van de looptijdverdelingen van de KA en KU signalen. Fig. 6.3 geeft hiervan een beeld.

### 6.5. Verwerking van TOF-metingen

Uit de vier afzonderlijke looptijdverdelingen van de meetsignalen KU, KA, LU en LA willen we de werkzame doorsnede  $Q_{l \leftarrow k}(g)$  afleiden. Hierbij komt een aantal problemen naar voren.

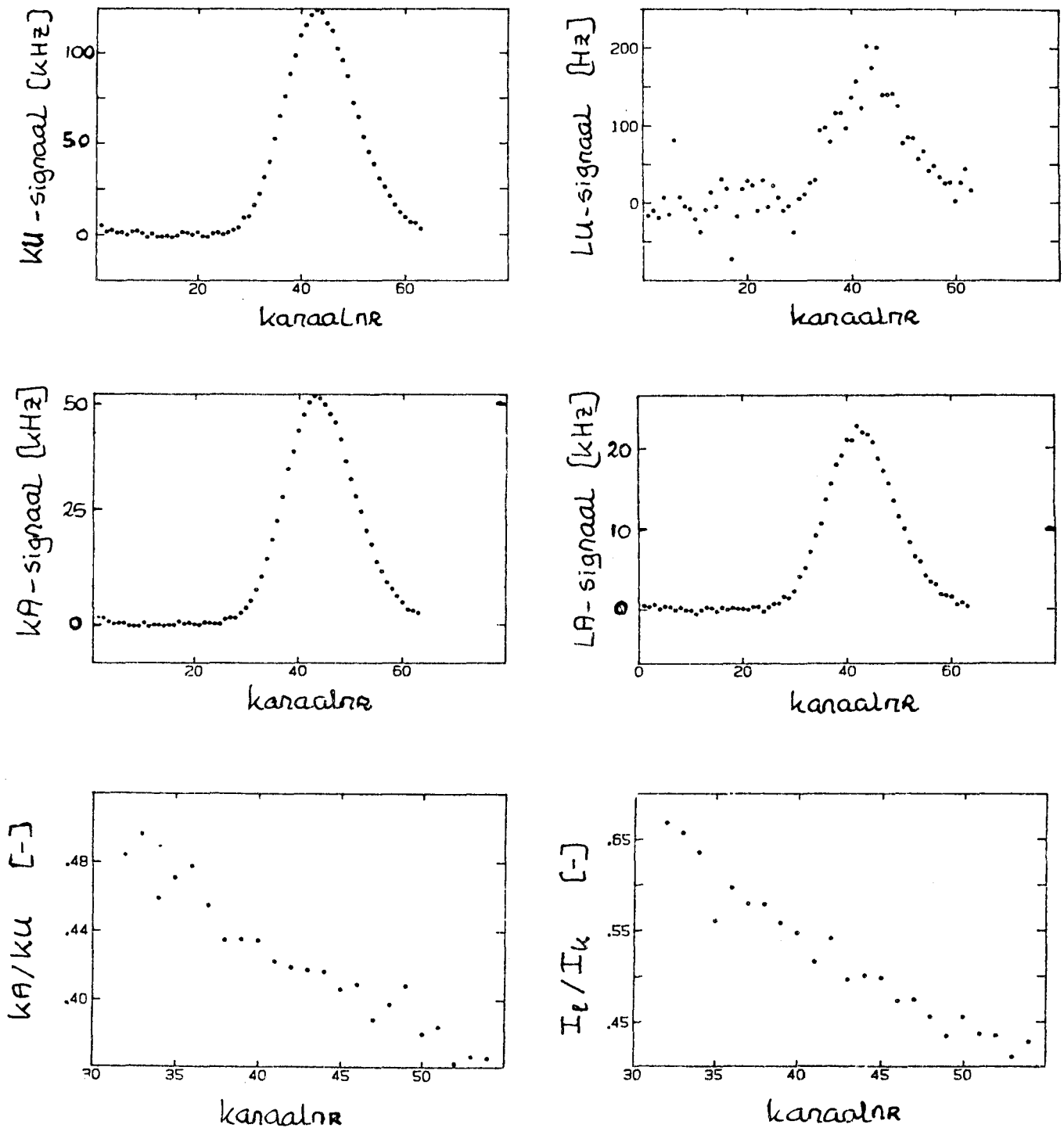


Fig. 6.3. : Looptijdspectra van de vier afzonderlijke meetsignalen KU, KA, LU, LA in het Minibundel-1 experiment, zoals gedefinieerd in hoofdstuk 3. Tevens worden de transmissiefactor  $T_r = KA/KU$  en de signaalverhouding  $I_l/I_k$  snelheidsopgelost getoond.

## Oriëntatie-effecten

Een eerste probleem wordt gevormd door het feit dat de richting van de relatieve snelheid  $\vec{g}$  voor hoofdbundel-deeltjes met verschillende snelheden  $v_{Ne^{**}}$  niet hetzelfde is. Bij een noodzakelijkerwijs vaste ruimtelijke stand van de laserpolarisatie  $\vec{E}_p$  zal dan ook de oriëntatie van het impulsmoment  $\vec{J}$  ten opzichte van  $\vec{g}$  variëren over de snelheidsverdeling van de hoofdbundeldeeltjes. Met de TOF-methode meten we dus nooit zuivere gepolariseerde werkzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}^{M_R}$  voor alle hoofdbundel-atomen (evenmin natuurlijk als voor niet-snelheidopgeloste metingen). Met behulp van Vgl'n (4.9) en (4.10) kan voor elke hoofdbundel-snelheid de waarde van de hoek  $\beta$  tussen  $\vec{E}_p$  en  $\vec{g}$  worden berekend. Met de reeds afgeleide bekende  $\beta$ -afhankelijkheid van de experimentele werkzame doorsnedes (Vgl'n (4.4) en (4.5)) kunnen we in principe de gemeten signaalverhouding  $I_l/I_k$  voor dit effect corrigeren. De verandering van de waarde van de hoek  $\beta$  over de gehele snelheidsverdeling van de hoofdbundeldeeltjes blijkt circa 5 graden te zijn, hetgeen resulteert in een correctie op de werkzame doorsnede van hoogstens  $\pm 5\%$  voor de overgangen met het grootste polarisatie-effect.

De invouw van de snelheidsverdelingen van hoofd- en dwarsbundel met de dichtheidsverdeling van dwarsbundeldeeltjes over het botsingsvolume blijkt een nog kleinere correctie ( $< 2\%$ ) op te leveren. Deze gecompliceerde nabewerking vergeten we dan ook voor de rest van dit werk.

## Calibratie Botsingsdoorsnedes

In paragraaf 3.5 gaven we reeds aan hoe de absolute waarde van de botsingsdoorsnede  $Q_{l \leftarrow k}$  voor het botsingsproces kan worden gecalibreerd op de gemeten signaalverhouding  $I_l/I_k$ . Per computer wordt de botsingsdoorsnede  $Q_{l \leftarrow k}$  bepaald uit de integraaluitdrukking van Vgl.(3.8), bij vaste snelheden van hoofd- en dwarsbundeldeeltjes (dit zijn gemiddelde snelheden!). In het algemeen blijkt de calibratiefactor sterk afhankelijk te zijn van de hoofdbundel-snelheid, zoals Fig. 6.4 laat zien.

Voor de metingen van hoofdstuk 4 en 5, waar we over de snelheidsverdelingen gemiddelde botsingsdoorsnedes bepalen, middelt deze correctie uit. Voor TOF-metingen dienen we deze calibratiefactor echter afhankelijk van de hoofdbundelsnelheid in te voeren. Dit maakt de absolute calibratie van werkzame doorsnedes  $Q_{l \leftarrow k}$  erg gecompliceerd. In de te bepalen

integralen van Vgl.(3.8) zijn de plaats- en snelheids-afhankelijkheden namelijk sterk verweven. Het probleem is niettemin in principe oplosbaar.

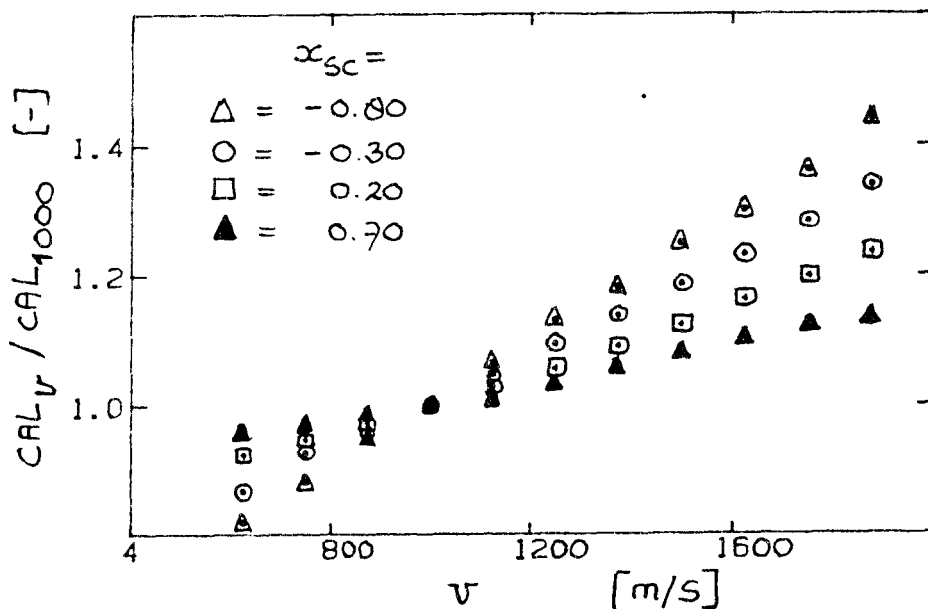


Fig. 6.4. : De snelheidsafhankelijkheid van de calibratie-factor  $CAL_v$  voor de berekening van absolute  $Ne^{**}$ -He botsingsdoorsnedes  $Q_{4\leftarrow 5}$  uit de signaalverhouding  $I_l/I_k$ . De calibratie-factor is geschaald op zijn waarde bij  $v = 1000$  m/s.

## 6.6. Meetresultaten voor het systeem $Ne^{**}$ -He

### 6.6.1 Experimenteel

Voor het systeem  $Ne^{**}$ -He zijn naar hoofdbundelsnelheid opgeloste botsingsdoorsnedes  $Q_{l\leftarrow k}$  gemeten voor de overgangen  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_4$  en  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_7$ . Door TOF-metingen te verrichten op verschillende posities  $x_{sc}$  van het botsingsvolume kunnen we aansluitende snelheidsgebieden bestrijken. De eerste resultaten voor het  $Ne^{**}$ -He systeem zijn in Fig. 6.5 te zien. De metingen aan de  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_7$  overgang zijn uitgevoerd met de pseudo-random-correlatie methode bij een kanaaltijd  $\tau_k = 5 \mu s$ . Voor de  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_4$  overgang werd de single-burst methode gebruikt, met een kanaaltijd  $\tau_k = 2 \mu s$ .

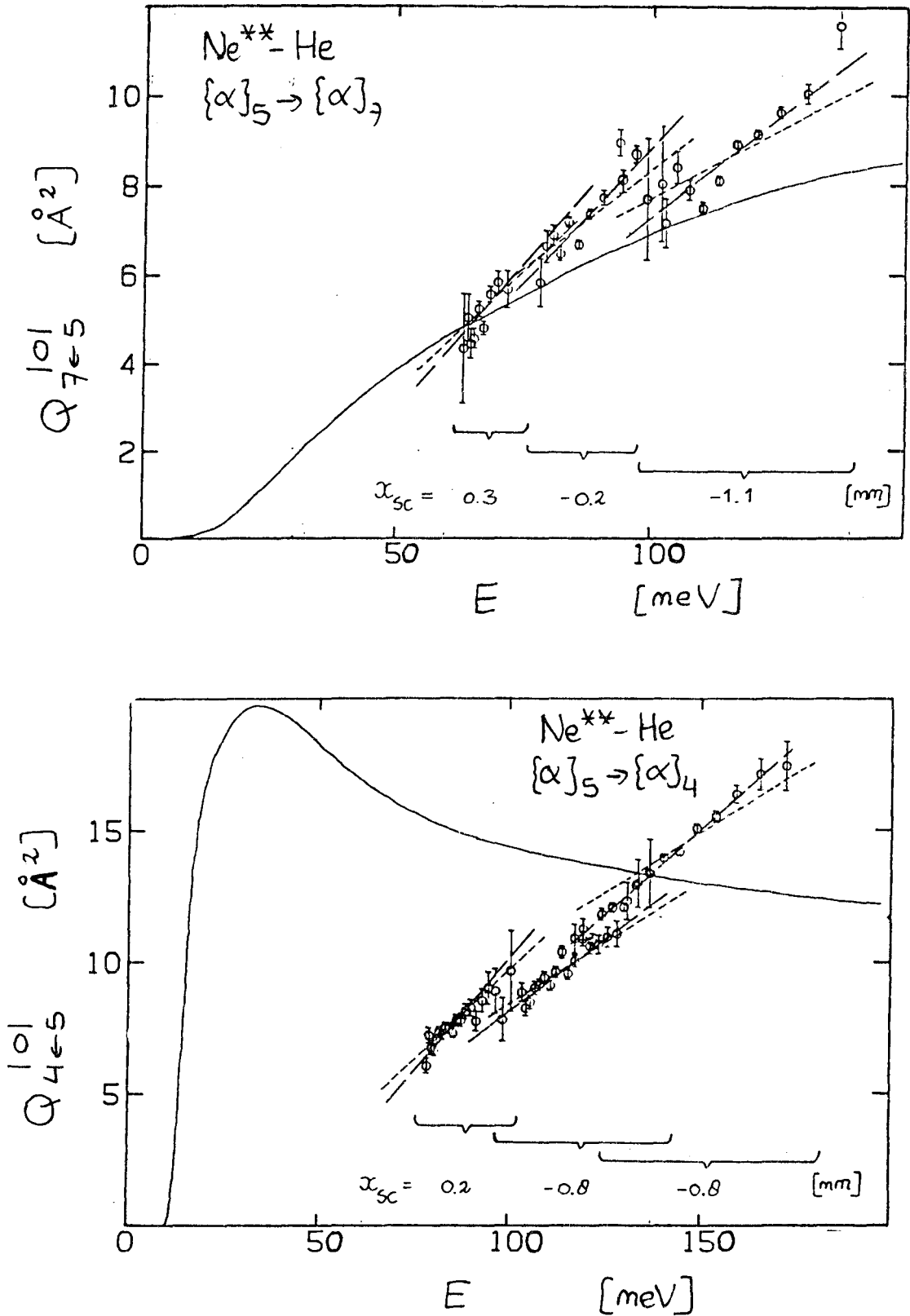


Fig. 6.5. : Snelheidsopgeloste meting van de gepolariseerde botsingsdoorsnedes  $Q_{4 \leftarrow 5}^{|0|}$  en  $Q_{7 \leftarrow 5}^{|0|}$  voor  $\text{Ne}^{**} - \text{He}$ . De gestreepte lijnen zijn het resultaat van de snelheidsafhankelijke calibratie. De getrokken lijn geeft het semiklassiek berekende verloop weer.

De versterker-electronica van de laser-chopper bleek bij deze korte kanaaltijden geen pseudo-random-correlatie metingen toe te laten.

De snelheidsafhankelijke calibratie van de meetpunten, die een voorlopig karakter draagt, verandert de hellingen van het verloop van de datapunten binnen het snelheidsgebied van één meting. Deze calibratie heeft inderdaad tot gevolg, dat de datapunten uit de verschillende snelheidsgebieden beter bij elkaar aansluiten.

### 6.6.2. Semiklassiek

De semiklassieke beschrijving van hoofdstuk 2 vormt in het geval van looptijdmetingen de enige zinvolle mogelijkheid om de experimenten te toetsen. De quantummechanische gekoppelde-kanalen berekeningen lenen zich vanwege hun tijdrovende karakter niet voor een confrontatie met de experimenteel bepaalde energieafhankelijkheden van botsingsdoorsnedes. Zij leveren alleen absolute botsingsdoorsnedes voor één bepaalde waarde van de botsingsenergie.

In Fig. 6.5 zijn daarom naast de experimentele resultaten ook de resultaten van semiklassieke berekeningen aan de energieafhankelijkheid ingetekend. Voor de  $\{a\}_5 \rightarrow \{a\}_7$  overgang is daarbij het "single-curve-crossing" model uit hoofdstuk 2 toegepast, voor de  $\{a\}_5 \rightarrow \{a\}_4$  overgang het "multiple-curve-crossing"-model. Zoals ook al in de hoofdstuk 5 is geconstateerd, is in het geval van de  $\{a\}_5 \rightarrow \{a\}_7$  sprake van perfecte overeenstemming. De snelheidsafhankelijke calibratie draagt hier in aanzienlijke mate toe bij. Anders is het wederom met de  $\{a\}_5 \rightarrow \{a\}_4$  overgang, waarvoor de energieafhankelijkheid sterk afwijkt van wat door de semiklassieke theorie wordt voorspeld. We herhalen, dat mogelijk een toepassing van de Demkov-theorie uitkomst zal bieden.



## 7. CONCLUSIES EN SUGGESTIES

De uitgebreide metingen die in de Minibundel-1 opstelling zijn gedaan aan overgangen binnen het kortlevende  $\text{Ne}^{***}$ -multiplet door botsingen met zowel He als Ne hebben een veelheid aan informatie opgeleverd. Dit betreft met name het optreden van oriëntatie-effecten, maar ook de invloed van de botsingsenergie is onderzocht. Zonder de verregaande automatisering van het meetproces, die tijdens dit werk zijn beslag heeft gekregen, zouden de metingen in deze vorm niet mogelijk zijn geweest. De metingen aan de  $^{22}\text{Ne}^{**}$  isotoop zouden veel baat vinden bij een hogere intensiteit van metastabiele  $\text{Ne}^*$ -atomen in de hoofdbundel. Voor een effectieve toepassing van looptijdmetingen volgens de pseudo-random-correlatie methode, met kortere kanaaltijden dan de hier gebruikte, zal het nodig zijn de versterker-electronica aan te passen.

De grote kracht van het huidige gekruiste bundelexperiment is dat als uiteindelijk resultaat absolute werkzame doorsnedes worden verkregen. De geschatte onnauwkeurigheid van  $\pm 30\%$ , die correspondeert met de waargenomen reproduceerbaarheid van de metingen, vormt gelet op de moeilijkheidsgraad van het experiment een niet onaanzienlijk succes.

Voor de analyse van de metingen is ten dele vruchtbaar gebruik gemaakt van een recent ontwikkelde meer gedetailleerde beschrijving van het proces van laser-excitatie van de kortlevende  $\text{Ne}^{***}$ -atomen. Het verdient aanbeveling deze nieuwe beschrijving, die onderscheid maakt naar magnetische subniveaus, over de gehele linie toe te passen. Tot de analyse van de looptijdmetingen kon helaas niet meer dan een eerste aanzet worden gegeven. Bij de calibratie van deze metingen raken we aan de grenzen van het toepassingsbereik van de huidige analyse-methode.

Bij de onderzochte thermische energieën, waarbij hoofdzakelijk de langere-dracht interacties worden getest, blijken volledig quantummechanische gekoppelde-kanalen berekeningen op basis van de (geëxtrapolerde) model-potentialen van Hennecart en Masnou-Seeuws de experimenteel waargenomen resultaten voor  $\text{Ne}^{***}$ -He goed te beschrijven. Uit de aard der zaak hebben deze berekeningen echter een "black-box" karakter.

Daarom is het binnen het kader van dit werk eigenlijk van nog meer

belang, dat het mogelijk blijkt inzicht in het botsingsproces te verkrijgen door uit te gaan van een semiklassiek model. Bij toepassing op overgangen binnen het  $Ne^{**}\{\alpha\}_{4,5,6,7}$ -multiplet, is aanzienlijk succes geboekt. Ons huidige begrip van het ontstaan van oriëntatie-effecten stoelt op symmetrie-beperkingen, op de aanwezigheid van avoided crossings tussen de adiabatische potentiaal-curven, en op een afweging van rotatiekoppeling en "locking".

Een soortgelijke aanpak biedt ook perspectieven in het  $Ne^{**}-Ne$  geval. De aanzienlijke overeenkomsten tussen de waargenomen werkzame doorsnedes voor  $Ne^{**}-Ne$  en  $Ne^{**}-He$  geven aan dat bij de huidige botsingsenergieën de effecten van ladingssymmetrie niet groot zijn. Een uitzondering vormt natuurlijk de  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_6$  overgang, die zich voor  $Ne^{**}-He$  bij kleinere internucleaire afstanden afspeelt, waar genoemde effecten eerder belangrijk zullen zijn.

Het bovenstaande is mutatis mutandis ook van toepassing op de vergelijking tussen de  $^{20}Ne^{**}-Ne$  en  $^{22}Ne^{**}-Ne$  systemen, waarvoor de meetresultaten binnen de meetnauwkeurigheid overeenstemmen. Dit alles vormt natuurlijk een gunstige randvoorwaarde voor een eerste-orde semiklassieke  $Ne^{**}-Ne$  berekening.

Wat betreft het verloop van de werkzame doorsnedes als functie van de botsingsenergie, wordt voor  $Ne^{**}-He$  de waargenomen trend in het algemeen goed geproduceerd door zowel de quantummechanische als de semiklassieke berekeningen. Een uitzondering vormt in dit verband de  $\{\alpha\}_5 \rightarrow \{\alpha\}_4$  overgang waarvoor de semiklassieke berekening te wensen overlaat. Misschien dient met name voor deze overgang ook aan Demkov-koppeling te worden gedacht. Groot nadeel bij dit alles vormt het huidige geringe energiebereik, dat echter in de toekomst zal worden uitgebreid. Om diezelfde reden zijn ook nog geen definitieve conclusies te trekken over de waargenomen verschillen in het gedrag van de  $Ne^{**}-He$  en de  $Ne^{**}-Ne$  doorsnedes.

Het volgende is echter al wel duidelijk. Waar vroeger uit de vergelijking van experiment met quantummechanische gekoppelde-kanalen berekeningen de juistheid van wisselwerkingspotentialen kon worden getoetst, bieden semiklassieke berekeningen superieur inzicht in de botsingsdynamica. Het zal interessant zijn na te gaan of de semiklassieke berekeningen ook voorspellende waarde hebben.

REFERENTIES

- ABR74 : M. Abramowitz & I.A. Stegun, "Handbook of Mathematical Functions",  
Dover, New York (1974)
- BEI83 : J.P.M. Beijers, afstudeerverslag TUE, VDF/NO 83-09
- BEU85 : F. v/d Beucken, stageverslag TUE, VDF/NO 85-21
- BEY72 : H.C.W. Beijerinck, proefschrift TH Eindhoven (1974)
- BEY77 : H.C.W. Beijerinck, "Molecuulbotsingen", collegedictaat TUE,  
VDF/NO 77-14
- BEY81 : H.C.W. Beijerinck & N.F. Verster, Physica **111C**, 327-352 (1981)
- BEY83 : H.C.W. Beijerinck, G.H. Kaashoek, J.P.M. Beijers & M.J. Verheijen,  
Physica **121C**, 425-436 (1983)
- BOG87 : M.R. v/d Boogaard, afstudeerverslag TUE, VDF/NO 87-07
- BOO87 : W. Boom, stageverslag TUE, VDF/NO 87-09
- BYK65 : V.K. Bykhovskii, E.E. Nikitin & M.Ya.Ovchinnikova, JETP **20**, 500  
(1965)
- COH74 : J.S. Cohen & B. Schneider, J. Chem. Phys. **61**, 3230 (1974)
- COO77 : F.C.M. Coolen, N. v. Schaik, R.M.M. Smits, M. Prins,  
L.W.G. Steenhuisen, Physica (Amsterdam) **93B+C**, 131 (1978)
- DAB87 : I. Dabrowski & G. Herzberg, J. Mol. Spectr. **73**, 183-214 (1978)
- DEL72 : J.B. Delos & W.R. Thornson, Phys. Rev.. A **6**, 728 (1972)
- DEM63 : Yu.N. Demkov, Soviet Phys. JETP **45**, 195 (1963)
- DRI85 : J.P.J. Driessen, afstudeerverslag TUE, VDF/NO 85-10
- GER86 : A.W.F. v. Gerven, afstudeerverslag TUE, VDF/NO 86-16
- HAB82 : H. Haberland, W. Konz & P. Oesterlin, Phys. B : At. Mol. Phys. **15**,  
2969 (1982)
- HAR83 : P. Harmetz & H. Schmarantzer, Phys. Lett. **93A**, 404 (1983)
- HEI82 : L.J.H.C. Heinemans, afstudeerverslag HTS-Eindhoven, VDF/NO 82-10
- HEN82 : D. Hennecart, proefschrift Université de Caen (1982)

- HEN85 : D. Hennecart & F. Masnou-Seeuws, J. Phys. B **18**, 657 (1985)
- HER85 : I.V. Hertel, Rep. Prog. Phys. **48**, 375 (1985)
- HOE87 : W.B.M. v. Hoek, intern rapport TUE, VDF/NO 87-03
- JAC78 : J. Jacobs, afstudeerverslag TUE, verschijnt in 1987
- KER87 : E.R.T. Kerstel, afstudeerverslag TUE, verschijnt in juli 1987
- KRA86 : P.H. Kramer, stageverslag VDF/NO 86-15
- LAN32 : L. Landau, Phys. Z. Sow. **2**, 46 (1932)
- MAN84 : M.P.I. Manders, intern rapport TUE, VDF/NO 84-12
- MAR85 : J.F.M. Martens, afstudeerverslag TUE, NI 85-03
- MES81 : A. Messiah, "Quantum Mechanics", vol. I+II, North Holland, Amsterdam (1981)
- NBS66 : W.L. Wiese, "Atomic Transition Probabilities I: Hydrogen through Neon", US dept. of Commerce, National Bureau of Standards
- NIK68-1 : E.E. Nikitin, "Chemische Elementarprozesse", Springer, Berlijn (1968)
- NIK68-2 : E.E. Nikitin,
- RUY84-1 : W.M.J. Ruyten, afstudeerverslag TUE, VDF/NO 84-06
- RUY84-2 : W.M.J. Ruyten, intern rapport TUE, VDF/NO 84-02
- SAN87 : G.J. Sandker, afstudeerverslag TUE, verschijnt november 1987
- SCH86 : J.M.H. Schonenberg, afstudeerverslag TUE, VDF/NO 86-01
- SEN86 : H.A.J. Senhorst, afstudeerverslag TUE, VDF/NO 86-08
- SEN87 : H.A.J. Senhorst, privé communicatie (1987)
- STU32 : E.C.G. Stückelberg, Helv. Phys. Acta **5**, 369 (1932)
- THE82 : P. Theeuws, H.C.W. Beyerinck, D.C. Schram & N.F. Verster, J. Phys. E **15**, 573 (1982)
- THO71 : W.R. Thornson, J.B. Delos & S.A. Boorstein, Phys. Rev. A **4**, 1052 (1971)
- VER81 : P.W.E. Verhelst, intern rapport, VDF/NO 79-18

- VER82 : M.J. Verheijen, H.W.C. Beijerinck & N.F. Verster, J. Phys. E :  
Sci. Instrum. **15**, 1198 (1982)
- VEU86 : W.T.J. Veugelers, stageverslag TUE, VDF/NO 86-03
- VLU81 : J.C. Vlugter, stageverslag TUE, VDF/NO 81-07
- VRAS7 : M. Vrakking, afstudeerverslag TUE, verschijnt augustus 1987
- VRES6 : E.J.D. Vredenbregt, afstudeerverslag TUE, VDF/NO 86-09
- WIJ87 : M. Wijnands, stageverslag TUE, VDF/NO 87-08
- WIL70 : G. Wilhelmi & F. Gompf, Nucl. Instr. Meth. **81**, 36-44 (1970)
- ZEN32 : C. Zener, Proc. Roy. Soc. A **137**, 696 (1932)

## APPENDIX A

De adiabatische potentiaalcurves voor het systeem  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$ , berekend uit de geëxtrapolerde model-potentialen van Hennecart. Zie hoofdstuk 2.

