

**MASTER**

**Intramultiplet mixing voor Ne<sup>\*\*</sup>(2p53p) + He-botsingen : semiklassieke beschrijving van orientatie-effecten**

Vredenburg, E.J.D.

*Award date:*  
1986

[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

Werkgroep Atomaire en Optische Wisselwerkingen  
Vakgroep Deeltjesfysica  
Technische Hogeschool Eindhoven

E.J.D. VREDENBREGT

Intramultiplet mixing voor  $\text{Ne}^{**}(2p^5 3p) +$   
He-botsingen: semiklassieke beschrijving  
van oriëntatie-effecten.

Afstudeerverslag VDF/NO 86-09

Dit afstudeerwerk werd verricht onder begelei-  
ding van Dr. H.C.W. Beijerinck,  
Ir. M.P.I. Manders en  
Prof.dr. B.J. Verhaar

INHOUD

SAMENVATTING	2
1. INLEIDING	3
2. QUANTUMMECHANISCHE VERSTROOIINGSTHEORIE	
2.1. Inleiding	7
2.2. Gekoppelde vergelijkingen	8
2.3. Kanaalfuncties	9
2.3.1. $\mathcal{N}$ - en N-basis	9
2.3.2. Koppeling tussen basisfuncties	10
2.4. Werkzame doorsnedes en de strooimatrix	13
2.4.1. Dubbel-, enkel- en ongepolariseerde doorsnedes	13
2.4.2. Berekening van werkzame doorsnedes uit S-matrixelementen	14
2.4.3. Experimentele gepolariseerde werkzame doorsnedes	17
2.5. Interactiematrix $V_I$	18
2.5.1. Elementaire wisselwerkingen	18
2.5.2. Samenhang tussen $V_I$ en de elementaire wisselwerkingen	23
3. ASPECTEN VAN DE BOTSING	
3.1. Inleiding	25
3.2. Radiële koppeling en avoided crossings	25
3.3. Limieten van werkzame doorsnedes	28
3.4. Rotatiekoppeling	32
3.4.1. $\mathcal{N}$ -opsplitsing en behoud van $\mathcal{N}$	32
3.4.2. Bepaling van een locking radius	34
3.4.3. Locking in het $Ne^{**} + He$ systeem	38
3.5. Omkeerpunten	40
4. EXPERIMENTEEL	
4.1. Experimentele processen	43
4.2. Experimentele signalen	44
4.3. Absolute botsingsdoorsnedes	47
4.4. Opstelling	48
4.4.1. Bundels	48
4.4.2. Optisch systeem	50
4.5. Uitlijning	52
4.6. Meetroutine en meetstrategie	53

5. METINGEN	
5.1. Polarisatiemetingen	55
5.2. Experimentele werkzame doorsnedes	56
5.3. Bepaling van positie en botsingsenergie	58
5.4. Verwerking van de metingen	60
5.5. Meetresultaten	62
5.6. Discussie	66
6. QUANTUMMECHANISCH BEREKENDE WERKZAME DOORSNEDES	
6.1. Beschikbare berekeningen	69
6.2. Binnengebied potentialen	70
6.3. Experimentele en berekende werkzame doorsnedes	74
6.4. Gedrag van gepolariseerde werkzame doorsnedes	77
6.4.1. Elastische werkzame doorsnedes	77
6.4.2. Inelastische gepolariseerde doorsnedes	79
7. SEMIKLASSIEKE BESCHRIJVING	
7.1. Landau-Zener theorie	85
7.2. Overgangswaarschijnlijkheden	87
7.3. Keuze van diabatische potentiaalkrommen	88
7.4. Werkzame doorsnedes	91
7.5. Multiple curve-crossing model voor $\mathcal{L} = 1$	95
7.6. Direkt curve-crossing model	100
8. CONCLUSIES	105
REFERENTIES	107
APPENDIX A1: Afleiding van de dubbelgepolariseerde doorsnede	109
APPENDIX A2: De dubbelgepolariseerde doorsnede is reëel	112
APPENDIX A3: Berekening van matricelementen $\langle (l_e l_c) L^s j_{\mu_j}   V_{\mathcal{L}}   (l_e l_c) L^s j'_{\mu'_j} \rangle$	114
APPENDIX B: Adiabatische potentiaalkrommen	120
APPENDIX C: Het model Beijers	123
APPENDIX D: Draaimatrices voor $j = 1$ en $j = 2$	124

SAMENVATTING

Beschouwd wordt intramultiplet mixing van kortlevende ( $\tau \approx 20$  ns) geëxciteerde  $\text{Ne}^{**}(2p^5 3p)$ -atomen bij botsingen met helium grondtoestand atomen. De aandacht gaat uit naar de  $\text{Ne}^{**}$ -toestanden  $\{\alpha\}_4$ ,  $\{\alpha\}_5$ ,  $\{\alpha\}_6$  en  $\{\alpha\}_7$ , waarbij  $\{\alpha\} = \{2p^5 3p\}$ .

Gemeten zijn inelastische werkzame doorsnedes voor overgangen tussen de genoemde toestanden bij verschillende oriëntaties van het elektronisch impulsmoment van het geëxciteerde neon atoom vóór de botsing. De gevoeligheid van werkzame doorsnedes voor deze oriëntatie blijkt per overgang te verschillen.

De werkzame doorsnedes zijn ook volledig quantummechanisch berekend. De berekende waarden stemmen vrij goed overeen met de experimentele.

De in deze berekeningen gebruikte adiabatische potentiaalkrommen (gekaracteriseerd door het quantumgetal  $\Omega$  van de projectie van het elektronisch impulsmoment op de internucleaire as) vertonen duidelijke locale koppelingen, zgn. "avoided crossings". Het optreden van deze locale koppelingen is bepalend over de grootte van inelastische werkzame doorsnedes. Voor  $\Omega = 0$  zijn er ten gevolge van de reflectiesymmetrie twee klassen van krommen, waarbij  $\{\alpha\}_4$  en  $\{\alpha\}_6$  in de ene en  $\{\alpha\}_5$  en  $\{\alpha\}_7$  in de andere klasse vallen. Door behoud van pariteit zijn toestanden uit verschillende klassen niet gekoppeld; dit speelt niet voor  $\Omega = 1$ . Hierdoor kunnen grote oriëntatie-effecten optreden. Voor de precieze grootte van oriëntatie-effecten is bovendien belangrijk dat de internucleaire as door de deeltjesbeweging van oriëntatie verandert ten opzicht van het elektronisch impulsmoment.

Met eenvoudige, semiklassieke modellen zijn berekeningen uitgevoerd ter ondersteuning van dit idee. Er blijkt een goede overeenstemming mogelijk tussen semiklassiek en quantummechanisch berekende werkzame doorsnedes. Inelastische overgangen tussen  $\text{Ne}^{**}$ -toestanden  $\{\alpha\}_{4,5,6,7}$  bij botsingen met helium atomen kunnen zowel kwalitatief als kwantitatief begrepen worden met behulp van semiklassieke theorieën.

## 1. INLEIDING

De werkgroep Atomaire en Optische Wisselwerkingen (AOW) bestudeert botsingen van grondtoestand atomen en kleine moleculen met geëxciteerde edelgasatomen. Het onderzoek wordt in de loop der jaren verlegd naar steeds complexere systemen met meer interne energie en/of meer interne vrijheidsgraden.

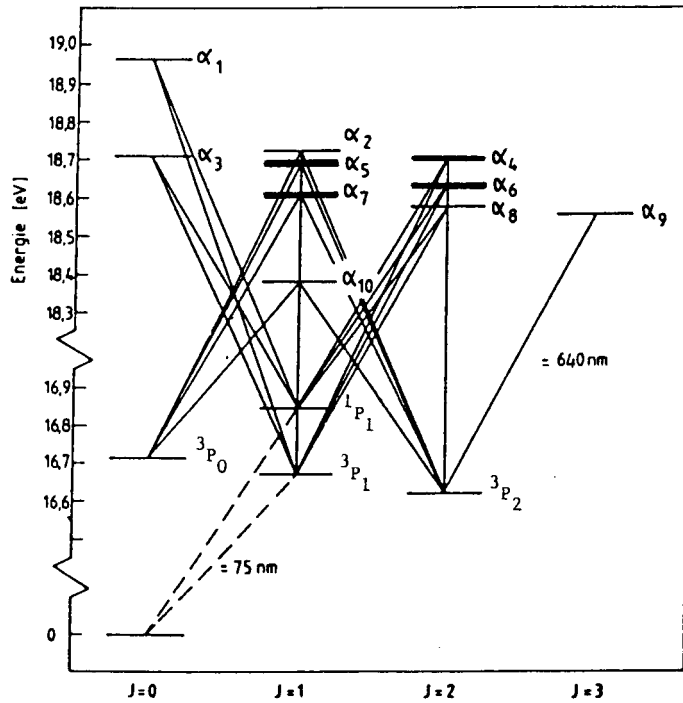
Bestudeerd worden ondermeer elastische verstrooiing [KRU85], Penning-ionisatie [SCH86], rotatie/vibratie-excitatie van moleculen [VLI86] en interacties met een laser [SEN86]. Een nieuw te starten lijn zal zich richten op gaslagen op oppervlakken.

Botsingsprocessen worden binnen AOW steeds bestudeerd in bundel-experimenten. Hierbij moet minstens één van de botsingspartners een kleinere of grotere afstand afleggen voordat het botsingscentrum wordt bereikt. Botsingen met geëxciteerde deeltjes zijn dan alleen mogelijk wanneer zij langlevend zijn ten opzichte van de tijdschaal van onze experimenten of wanneer zij in het botsingscentrum zélf geproduceerd kunnen worden.

In de eerste categorie van deeltjes vallen metastabiele edelgasatomen, waarbij één electron uit de buitenste schil naar de eerstvolgende hoger gelegen s-baan is geëxciteerd. Vanwege selectieregels kunnen twee van de vier mogelijke fijnstruktuurnivo's niet snel vervallen naar de grondtoestand en zijn daarom metastabiel, d.w.z. langlevend. Zij fungeren in onze experimenten daarom vaak als transporteurs van interne energie. Zij worden aangegeven met R\*.

Met behulp van een laser kunnen uit metastabiele edelgasatomen direct in het botsingscentrum elektronisch hoger gelegen edelgasatomen R\*\* worden geproduceerd. Hierbij wordt door het resonante laserveld het buitenste (s-)electron naar de eerstvolgende hoger gelegen p-baan gebracht. Deze edelgasatomen R\*\* hebben een uitermate korte levensduur ( $\tau \approx 20$  ns) en worden daarom vaak als "kortlevende deeltjes" aangeduid. De kortlevende nivo's van Ne spelen bijvoorbeeld een rol in He-Ne-lasers.

In figuur (1.1) is voor Neon het energieschema getekend met daarin de grondtoestand, de 3s- en 3p-nivo's. De eerste aangeslagen toestand  $Ne^*(2p^5 3s)$  splitst zich zoals gezegd in vier fijnstruktuurnivo's. Ten gevolge van het hogere baanimpulsmoment van een p-electron, is dit aantal toegenomen tot tien voor het kortlevende  $Ne^{**}(2p^5 3s)$ -aatom. In dit verslag zullen wij deze toestanden steeds noteren als  $Ne^{**} \{ \alpha \}_k$ . Hierbij staat  $\{ \alpha \}$  voor  $\{ 2p^5 3p \}$ , en de index k loopt van 1 tot 10 met afnemende interne energie.

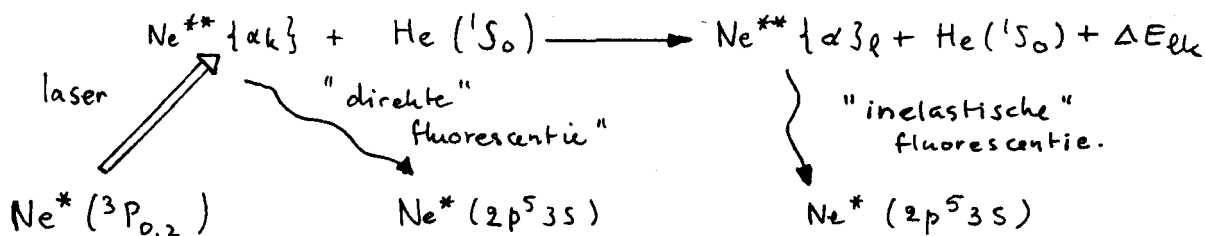


Figuur 1.1: Energienivo- en vervalschema van Neon. Ingetekend zijn de grondtoestand, de  $3s$ - en  $3p$ -nivo's. Op de horizontale as staat het elektronisch impulsmoment uit. Let op de schaalonderbreking!

De kleine energie-afstand tussen de kortlevende nivo's ( $\Delta E \leq 11 \text{ meV}$ ) leidt ertoe dat zelfs bij botsingen met grondtoestand edelgasatomen er een kans is dat het  $\text{Ne}^{**}\{^3\alpha\}$ -aatom tijdens de botsing overgaat naar een andere ( $\{^3\alpha\}$ -)toestand binnen hetzelfde multiplet. Dit proces, bekend als intramultiplet mixing, bestuderen wij in dit verslag voor botsingen tussen  $\text{Ne}^{**}$ - en  $\text{He}(^1S_0)$ -atomen. Het Helium blijft hierbij voortdurend in de grondtoestand. Het is alleen maar nodig om tijdens de botsing de  $\text{Ne}^{**}$ -nivo's te mengen, maar verliest of krijgt hierbij geen extra interne energie. Ook is het elektronisch impulsmoment van het He-aatom voor en na de botsing nul, en speelt geen enkele rol.

Experimenteel wordt het proces van intramultiplet mixing bestudeerd in de opstelling "Minibundel I", speciaal ontworpen voor onderzoek aan kortlevende deeltjes. Met een laser worden in deze opstelling  $\text{Ne}^*(^3P_{0,2})$ -metastabielen geëxciteerd naar een kortlevende toestand

$Ne^{**} \{ \alpha \} k$ . Een gedeelte van de zo geproduceerde  $Ne^{**}$ -atomen maakt bij botsingen met heliumatomen een inelastische overgang naar de  $Ne^{**} \{ \alpha \} \ell$ -toestand. De waarschijnlijkheid van een dergelijke overgang volgt uit de verhouding van "inelastische" en "direkte" fluorescentiestraling. Inelastische fluorescentiestraling komt vrij bij het verval van de eindtoestand  $Ne^{**} \{ \alpha \} \ell$  naar een van de enkelgeëxciteerde nivo's. De directe fluorescentiestraling is afkomstig van het verval van de beginttoestand  $Ne^{**} \{ \alpha \} k$ . De totale reactievergelijking van het bestudeerde proces is dus



De golflengten van een aantal vervalslijnen zijn gegeven in tabel (1.1).

Tabel 1.1. Golflengten (in (nm)) en branching-ratio's ( $A_{ki}/A_k$ ) voor de  $Ne^{**} \{ \alpha \} k - Ne^*$  vervalslijnen.

$k$	${}^3P_2$	${}^3P_1$	${}^3P_0$	${}^1P_1$
1		549.1 (0.00)		585.2 (1.00)
2	588.2 (0.21)	603.9 (0.10)	616.4 (0.27)	659.9 (0.42)
3		607.4 (1.00)		665.2 (0.00)
4	594.5 (0.21)	609.6 (0.33)		667.8 (0.46)
5	597.6 (0.08)	612.8 (0.06)	626.7 (0.42)	671.7 (0.44)
6	614.3 (0.47)	630.5 (0.11)		692.9 (0.42)
7	621.7 (0.16)	638.3 (0.58)	653.3 (0.26)	702.4 (0.00)
8	633.4 (0.34)	650.7 (0.57)		717.4 (0.09)
9	640.2 (1.00)			
10	703.2 (0.60)	724.5 (0.30)	743.9 (0.10)	808.2 (0.00)

De aandacht ligt bij dit proces niet alleen bij de experimentele kant [BEI83 MAR85, DRI85]. Ondermeer geïnspireerd door de beschikbaarheid van volledige modelpotentialen [HEN82] is in samenwerking met de werkgroep Verhaar van de Vakgroep Theoretische Natuurkunde een rekenprogramma opgezet [MAR85], waarmee inelastische werkzame doorsnedes kunnen worden berekend. Dit programma is volledig op quantummechanische basis. De bedoeling is o.a., door vergelijking van experiment en theorie, de modelpotentialen zodanig aan te passen dat zij de werkelijke  $Ne^{**}$ -He-wisselwerkingen zo goed mogelijk beschrijven.



Zowel de experimentele als de theoretische resultaten tonen aan dat de waarschijnlijkheid van bepaalde inelastische overgangen in belangrijke mate bepaald wordt door de ruimtelijke oriëntatie van het elektronisch impulsmoment van het  $\text{Ne}^{**}$ -atoom vóór de botsing. We spreken van een oriëntatie-effect.

In dit verslag bestuderen wij het tot stand komen van oriëntatie-effecten voor inelastische overgangen binnen het subsysteem van  $\text{Ne}^{**}$ -toestanden  $\{\alpha\}_4$ ,  $\{\alpha\}_5$ ,  $\{\alpha\}_6$ ,  $\{\alpha\}_7$ . Deze zijn in fig. (1.1) wat dikker aangezet.

In hoofdstuk 2 presenteren wij eerst het quantummechanisch formalisme waardoor het botsingsproces beschreven wordt. In hoofdstuk 3 halen wij daaruit die punten die ons belangrijk lijken voor het tot stand komen van inelastische overgangen en oriëntatie-effecten. Van de reeds meermalen beschreven opstelling [RUY84, DRI85] zijn de hoofdpunten vermeld in hoofdstuk 4, en de hiermee in dit afstudeerwerk behaald experimentele resultaten in hoofdstuk 5.

Na vergelijking van experiment en berekening signaleren wij de belangrijkste punten ten aanzien van de grootte, het oriëntatie-effect en de opbouw van werkzame doorsnedes (hoofdstuk 6). Deze punten zullen wij daarna in hoofdstuk 7 zowel kwalitatief als kwantitatief proberen te beschrijven in een eenvoudig, semiklassiek kader.

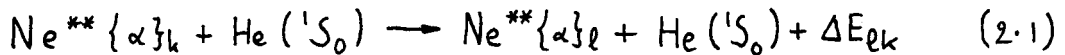
De conclusies en suggesties tenslotte zijn vermeld in hoofdstuk 8.

Om historische redenen worden in dit verslag nog twee eenheden gebruikt voor de werkzame doorsnedes, te weten  $1 \text{ Bohr} = 1 a_0 = 0.52918 \text{ \AA}$ , en de  $\text{\AA}$  zelf.

## 2. QUANTUMMECHANISCHE VERSTROOINGSTHEORIE

### 2.1. Inleiding

In dit hoofdstuk wordt het botsingsproces onder beschouwing,



beschreven m.b.v. quantummechanische verstrooiingstheorie. In het bijzonder wordt een uitdrukking afgeleid voor de inelastische botsingsdoorsnede  $Q_{l \leftarrow k}$  voor de botsinggeïnduceerde  $\{\alpha\}_l \leftarrow \{\alpha\}_k$  overgang.

In een quantummechanische behandeling van het botsingsprobleem moet het totale systeem van elektronen en kernen worden beschreven met een golffunctie  $\Psi$  die afhangt van alle elektronen- en kerncoördinaten,  $\vec{r}$  resp.  $\vec{R}$ . Een dergelijk veel-deeltjes probleem is in de praktijk niet exact oplosbaar en vraagt om simplificatie.

Van de hier gebruikte benaderingen moet allereerst de Born-Oppenheimer benadering worden genoemd. Hierbij wordt er van uit gegaan dat de beweging van de kernen de elektronentoestand niet beïnvloedt, omdat de elektronen zoveel sneller zijn dan de kernen dat de electronengolffunctie zich adiabatisch kan aanpassen aan de veranderende kernposities. Dit houdt in dat we de totale hamiltoniaan  $H$  die het botsende systeem beschrijft, kunnen opsplitsen in een deel dat alléén op de kerncoördinaten werkt, plus een deel dat alléén op de elektronencoördinaten werkt, en daarbij nog parametrisch afhangt van de kerncoördinaten. Deze benadering is goed voor botsingsenergieën kleiner dan 1 keV, uitgezonderd bij die internucleaire afstanden waar de adiabatische potentiaalcurven van de elektronentoestanden zgn. "avoided crossings" vertonen en de elektronengolffunctie sterk verandert als functie van  $R$ .

Een tweede benadering is de veronderstelling dat het He-atoom inert is: het bevindt zich voortdurend in dezelfde, ongestoorde elektronische (grond)-toestand. Aanleiding voor deze benadering is het feit dat de interne energie van  $\text{Ne}^{**}(2p^5 3p)$  t.o.v. de  $\text{Ne}(2p^6)$ -grondtoestand, maximaal 18.9 eV, ca. 1 eV lager is dan de minimaal noodzakelijke energie voor excitatie van het  $\text{He}(^1S_0)$  naar de eerste aangeslagen toestand. Dit "gat" kan bovendien niet worden gedicht door de kinetische energie van de botsing (nu: 0.1 eV, toekomst 0.1-5 eV) daar deze niet makkelijk wordt omgezet in elektronische energie. Andere toestanden van He zijn dus relatief ver

weg. Consequentie is dat het He door voortdurend dezelfde golf functie wordt beschreven, die in de bewegingsvergelijkingen dan een constante factor vormt, welke vervolgens kan worden weggelaten. Omdat het He( $^1S_0$ ) bovendien geen elektronisch impulsmoment  $\langle \vec{j}^2 \rangle = 0$  heeft, speelt ook dit geen rol bij de botsing.

## 2.2. Gekoppelde vergelijkingen

De stationaire Schrödinger vergelijking voor het proces (2.1) luidt:

$$(T_n + H_{mol}) \Psi(\vec{r}, \vec{R}) = E \Psi(\vec{r}, \vec{R}) \quad (2.2)$$

De operator  $T_n = -\frac{\hbar^2}{2\mu R^2} \vec{\nabla}_R^2$ , met  $\mu$  de gereduceerde massa, beschrijft de massamiddelpunts- of kernbeweging. De operator  $H^{mol}$  bevat alle moleculaire energieën en wisselwerkingen en kan verder worden opgesplitst als

$$H^{mol}(\vec{r}, \vec{R}) = H^{at, Ne^{**}} + H^{at, He} + V_I(\vec{r}, \vec{R}) \quad (2.3)$$

met  $H^{at, Ne^{**}}$  en  $H^{at, He}$  de atomaire  $Ne^{**}$  en He-hamiltonianen en  $V_I$  de matrix van fysische koppelingen tussen de  $Ne^{**}$  en He-toestanden.

We ontwikkelen  $\Psi(\vec{r}, \vec{R})$  maar een volledige, orthonormale set basisfuncties  $\varphi_i$ , die afhangen van alle relevante quantumgetallen maar niet van de kernafstand  $R$ . De ontwikkelingscoëfficiënten zullen wij schrijven als  $F_i(R)/R$ , zodat

$$\Psi(\vec{r}, \vec{R}) = \sum_i \frac{F_i(R)}{R} |\varphi_i(\vec{r})\rangle \quad (2.4)$$

Bij invullen in (2.2) en linksvermenigvuldiging met  $\langle \varphi_i' |$  resulteert dan een stelsel van gekoppelde tweede orde differentiiaalvergelijkingen

$$\begin{aligned} \frac{d^2 F_i'(R)}{dR^2} - E F_i'(R) &= \sum_i \frac{2\mu}{\hbar^2} \langle \varphi_i' | H^{mol} | \varphi_i \rangle F_i(R) \\ &+ \sum_i \frac{2\mu}{\hbar^2} \langle \varphi_i' | T_{rot} | \varphi_i \rangle F_i(R) \end{aligned} \quad (2.5)$$

De operator  $T_{rot}$  bevat het hoekafhankelijk deel van  $T_n$ .

De basisfuncties  $\varphi_i$  zullen wij vaak aanduiden met de term "kanaalfuncties".

Bij een keuze van de  $\varphi_i$  waarbij de sommatie over  $i$  in (2.5) na een

eindig aantal termen kan worden afgebroken, is het systeem van vergelijkingen in principe door (numerieke) integratie oplosbaar. Het programma "Neon/Coupledchannels" voert deze integratie uit, bij M kanalen resulterend in M onafhankelijke reguliere oplossingsvectoren, op te vatten als de kolommen van een oplossingsmatrix  $\underline{\underline{F}}(\mathbf{R})$ . Fysisch interessante oplossingen worden gevonden door  $\underline{\underline{F}}$  zo te bepalen dat elke kolomvector in één kanaal (het ingangskanaal) een inlopende (bol)golf bevat, en uitlopende bolgolven in alle kanalen. De oplossingsmatrix wordt dus geschreven in de vorm

$$\underline{\underline{F}}(\mathbf{R}) = \underline{\underline{I}}(\mathbf{R}) - \underline{\underline{O}}(\mathbf{R}) \cdot \underline{\underline{S}} \quad (2.6)$$

waarbij de diagonaalmatrices  $\underline{\underline{I}}$  en  $\underline{\underline{O}}$  de in- resp. uitlopende bolgolven bevatten. De zgn. strooimatrix  $\underline{\underline{S}}$  geeft de sterktes van de uitlopende golven. Hieruit kunnen de botsingsdoorsnedes  $Q_{\ell k}$  voor het proces van (2.1) worden berekend volgens het recept van § 2.4.

## 2.3. Kanaalfuncties

### 2.3.1. $\Omega$ - en N-basis

Een verstandige keuze van de kanaalfuncties  $|\varphi_i\rangle$  is die waarbij een zo groot mogelijke simplificatie van het probleem (2.5) optreedt, i.c. waarbij het aantal koppelingen tussen de  $|\varphi_i\rangle$  onderling wordt geminimaliseerd, en het gekoppelde kanalen probleem zoveel mogelijk wordt gesplitst in onderling onafhankelijke deelproblemen. Hierbij kunnen we gebruik maken van behoudswetten: er is behoud van totaal impulsmoment  $\vec{P}$ ; ook is het botsingsproces (2.1) inversie-symmetrisch en is er daarom behoud van pariteit  $\pi$ . Kiezen we dan de kanaalfuncties zodanig dat zij eigenfuncties zijn van de impulsmoment-operatoren  $\vec{P}^2$  en  $P_z$  (met z de z-as van het laboratorium-vaste assen-stelsel) én van de pariteitsoperator  $\Pi$ , dan kunnen kanaalfuncties met verschillende eigenwaarden  $P(P+1)\hbar^2$ ,  $M_p\hbar$  resp.  $\pi = \pm 1$  nooit koppelen.

### N-basis

Kanaalfuncties die hieraan voldoen én onafhankelijk zijn van de kernafstand  $\mathbf{R}$  zijn de N-diabatische basisfuncties van [MAR85],

$$|\varphi_i\rangle = |\pi \alpha_k \rangle_k N P M_p \rangle \quad (2.7)$$

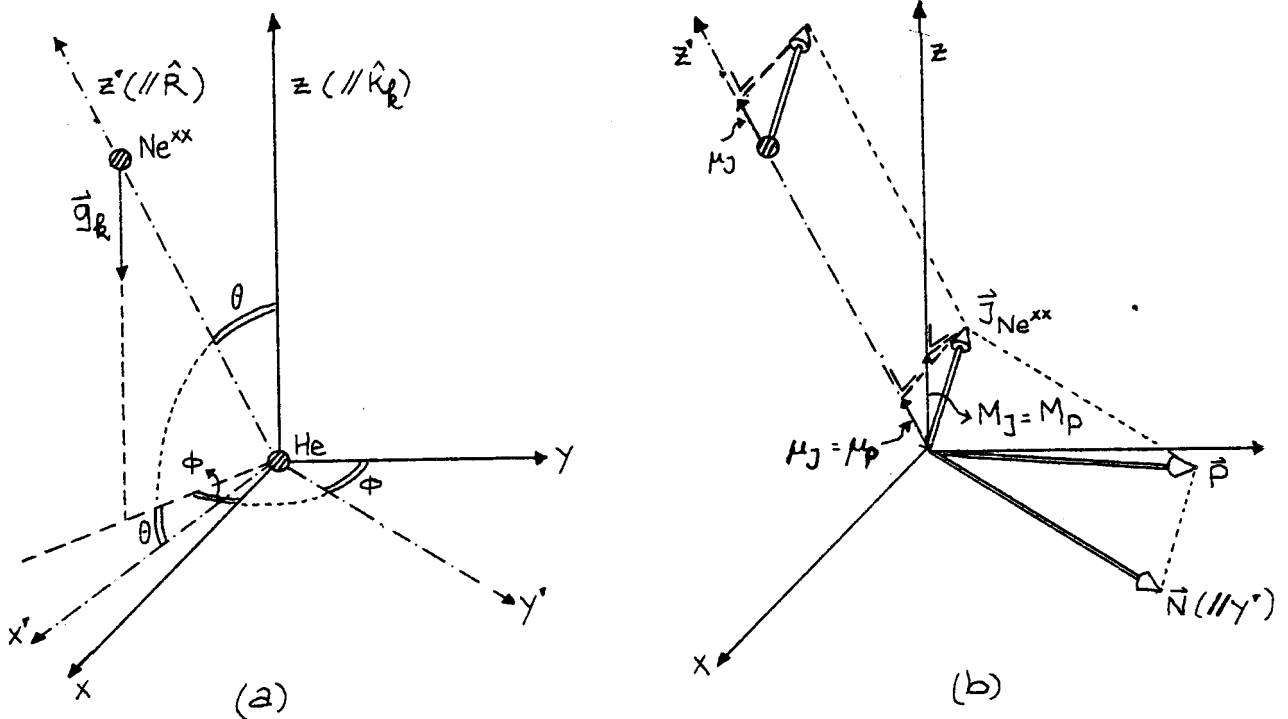
Deze ontstaan als het produkt van atomaire Ne-eigenfuncties  $|\alpha_k J_k M_k\rangle$  (met een welbepaalde projectie  $M_k \hbar$  van het elektronisch impulsmoment  $\vec{J}_k$  op de laboratorium-vaste z-as) en van bolfuncties  $|NM_N\rangle$ ,

$$|NM_N\rangle = Y_{NM_N}(\hat{R}) \quad (2.8)$$

met  $\hat{R}$  de richting van de internucleaire as t.o.v. het laboratorium-vaste stelsel (zie figuur 2.1). De laatste zijn eigenfuncties van de operator  $T_{\text{rot}}$ ,

$$T_{\text{rot}} |NM_N\rangle = \frac{\vec{N}^2}{2\mu R^2} |NM_N\rangle = \frac{N(N+1)\hbar^2}{2\mu R^2} |NM_N\rangle, \quad (2.9)$$

$N$  is dus het rotationeel impulsmomentquantumgetal.



Figuur 2.1: Assenstelsels en quantumgetallen. Fig. a: lichaamsvast ( $x'y'z'$ )- en ruimtevast ( $x,y,z$ )-assenstelsel worden in elkaar overgevoerd door rotatie over Eulerhoeken  $\theta$  en  $\phi$ . De  $y'$ -as is zo gekozen dat de derde Eulerhoek  $\psi = 0$ . Fig. b: elektronisch impulsmoment  $\vec{J}$ , rotationeel impulsmoment  $\vec{N}$  en totaal impulsmoment  $\vec{P} = \vec{J} + \vec{N}$  met projecties op ruimtevast- en lichaamsvast assenstelsel. De projectie van  $\vec{N}$  op de lichaamsvaste as  $\mu_N \hbar = 0$ .

De produkten  $|\alpha_k J_k\rangle |N M_N\rangle$  worden nog vermenigvuldigd met atomaire He-eigenfuncties en dan m.b.v. impulsmomentkoppeling van  $\vec{J} + \vec{N}$  tot  $\vec{P}$  samengesteld tot de genoemde N-diabatische functies:

$$|\alpha_k J_k N P M_P\rangle = \sum_{M_k = -J_k}^{J_k} \sum_{M_N = -N}^N (J_k M_k N M_N | P M_P) \times \\ \times |\alpha_k J_k M_k\rangle |N M_N\rangle |He\rangle \quad (2.10)$$

De symbolen  $(J_k M_k N M_N | P M_P)$  zijn Clebsh-Gordan coëfficiënten [MES81]. De zo gedefiniëerde functies hebben meteen welbepaalde pariteit  $\pi$ :

$$\pi = (-)^N \quad (2.11)$$

Omdat ze eigenfuncties zijn van  $T_{rot}$ , worden in deze representatie koppelingen tussen kanaalfuncties uitsluitend veroorzaakt door de interactiematrix  $V_I$ . Ze zijn daarom bij uitstek geschikt voor een asymptotische beschrijving ( $R \rightarrow \infty$ ) van het botsende systeem.

### $\Omega$ -basis

Het programma "Neon/Coupledchannels" berekent de strooimatrix t.o.v. de N-diabatische basis, maar voert de integratie van de vergelijkingen (2.5) uit in een representatie waarin de interactiematrix  $V_I$  eenvoudig kan worden bepaald (zie § 2.5). Deze " $\Omega$ -diabatische" representatie [MAR85] verschilt van de N-diabatische doordat de atomaire Ne-eigenfuncties nu worden gekozen met een welbepaalde projectie  $\mu_k \hbar$  van het elektronisch impulsmoment  $\vec{J}_k$  op de internucleaire as (deze as zullen wij in dit verslag steeds aanduiden als de z'-as; projecties van impulsmomenten op deze as zullen wij steeds aangeven met Griekse letters). Deze functies draaien tijdens de botsing a.h.w. mee met de internucleaire as, op zodanig wijze dat de projectie van  $\vec{J}_k$  op de lichaamsvaste as een behouden grootheid is.

Bij het samenstellen van deze atomaire eigenfuncties  $|\alpha_k J_k \mu_k\rangle$  met rotationele functies tot  $\Omega$ -diabatische kanaalfuncties  $|\alpha_k J_k \Omega P M_P\rangle$  worden zodanige combinaties van toestanden  $|\alpha_k J_k \mu_k = \Omega\rangle$  en  $|\alpha_k J_k \mu_k = -\Omega\rangle$  genomen, dat functies met een welbepaalde pariteit  $\pi$  ontstaan. Het quantumgetal  $\Omega$  geeft dan de absolute waarde van de projectie van  $\vec{J}_k$  op de internucleaire as. De  $\Omega$ -diabatische  $|\alpha_k J_k \Omega P M_P\rangle$  zijn bovendien, zoals al uit de notatie blijkt, eigenfuncties van  $\vec{P}^2$  en  $P_z$ .

Er bestaat een eenvoudige transformatie van  $\Omega$ - naar N-basis:

$$\begin{aligned}
 |\pi \alpha_k J_k \Omega P M_p\rangle &= \\
 &= \sqrt{2} (-)^{J_k - \Omega} \sum_N (P \Omega J_k - \Omega | N 0) |\pi \alpha_k J_k N P M_p\rangle \quad (\Omega > 0, \pi = (-)^N) \\
 &= (-)^{J_k} \sum_N (P 0 J_k | N 0) |\pi \alpha_k J_k N P M_p\rangle \quad (\Omega = 0, (-)^N = \pi = (-)^{P+J_k})
 \end{aligned} \tag{2.12}$$

### 2.3.2. Koppeling tussen basisfuncties

De gekoppelde kanalenvergelijking luidt volgens [MAR85] in de  $\Omega$ -diabatische basis

$$\begin{aligned}
 F_k''(R) + k_k^2 F_k(R) &= \sum_l -\frac{2k}{\hbar^2} \langle k | T_{rot} | l \rangle F_l(R) + \\
 &+ \sum_l \frac{2\mu}{\hbar^2} \langle k | V_I | l \rangle F_l(R)
 \end{aligned} \tag{2.13}$$

waarin  $k_k$  het asymptotische golfgetal van toestand  $|k\rangle$  is, en

$$|l\rangle = |\pi \alpha_l J_l \Omega_l P M_p\rangle \tag{2.14}$$

$$\langle k | T_{rot} | l \rangle = \delta_{pp'} \delta_{M_p M_p'} \delta_{\pi, \pi'} \delta_{\Omega_l J_l, \alpha_k J_k} \cdot \frac{\hbar^2}{2\mu R^2} \times \tag{2.15}$$

$$\times \begin{cases} P(P+1) + J_k(J_k+1) - 2\Omega_k^2 & (\Omega_k = \Omega_l) \\
 \{P(P+1) - \Omega_l \Omega_k\}^{1/2} \{J_k(J_k+1) - \Omega_l \Omega_k\}^{1/2} & (|\Omega_k - \Omega_l| = 1, \Omega_l, \Omega_k > 0) \\
 \{P(P+1) J_k J_{k+1}\}^{1/2} \sqrt{2} & (|\Omega_k - \Omega_l| = 1, \Omega_k = 0 \text{ of } \Omega_l = 0) \end{cases}$$

$$\langle k | V_I | l \rangle = \delta_{pp'} \delta_{M_p M_p'} \delta_{\pi, \pi'} \delta_{\Omega_l \Omega_k} \left\{ \frac{2P+1}{4\pi} \right\}^{1/2} \times \tag{2.16}$$

$$\times \begin{cases} \left| \mathcal{D}_{M_p, 0}^{(P)}(\theta, \phi, 0) \right|^2 \langle \alpha_l J_l \mu_l = 0 | V_I | \alpha_k J_k \mu_k = 0 \rangle & [\Omega_k = 0] \\
 \frac{1}{2} \left\{ \left| \mathcal{D}_{M_p, \Omega_k}^{(P)}(\theta, \phi, 0) \right|^2 \langle \alpha_l J_l \mu_l = \Omega_k | V_I | \alpha_k J_k \mu_k = \Omega_k \rangle + \right. \\
 \left. + (-)^{J_k + J_l} \left| \mathcal{D}_{M_p, -\Omega_k}^{(P)}(\theta, \phi, 0) \right|^2 \langle \alpha_l J_l \mu_l = -\Omega_k | V_I | \alpha_k J_k \mu_k = -\Omega_k \rangle \right\} & [\Omega_k > 0] \end{cases}$$

De functies  $D_{M_p, \Omega_k}^{(p)}(\theta, \phi, 0)$  zijn Wigner-D-functies [MES81];  $\theta$  en  $\phi$  zijn gedefiniëerd in figuur (2.1).

In de matrixelementen van  $T_{rot}$  voor  $\Omega_l = \Omega_k$  herkennen wij de centrifugaalpotentiaal. Uit deze formules kunnen wij concluderen dat er tussen  $\Omega$ -diabatische functies twee soorten koppelingen bestaan:

- 1) een mathematische koppeling  $\langle k | T_{rot} | l \rangle$ , tussen functies die verschillende subnivo's  $| \alpha_k J_k \mu_k \rangle$  van dezelfde atomaire Ne-toestand  $| \alpha_k J_k \rangle$  beschrijven (vgl. 2.15); we spreken van rotatiekoppeling. Ze is het gevolg van draaiing van de internucleaire as door de relatieve beweging van de botsende deeltjes, waardoor de projectie van  $\vec{J}_k$  op de internucleaire as steeds andere waarden aanneemt.
- 2) een fysische koppeling  $\langle k | V_I | l \rangle$  tussen functies die verschillende atomaire toestanden  $| \alpha_k J_k \rangle$  beschrijven bij dezelfde  $\Omega$ .

Zonder rotationele koppeling zijn alleen inelastische overgangen tussen toestanden met gelijke  $\Omega$  mogelijk, en is  $\Omega$  een behouden grootheid.

Zonder fysische koppeling zijn in het geheel geen inelastische overgangen tussen Ne\*\*-toestanden mogelijk.

## 2.4. Werkzame doorsnedes en de strooimatrix

### 2.4.1. Dubbel-, enkel- en ongepolariseerde doorsnedes

Fysische oplossingen van de Schrödingervergelijking (2.2) beschrijven voor grote internucleaire afstanden  $R$  een vlakke golf van t.o.v. He-atomen bewegende Ne\*\*-atomen, in een welbepaalde toestand  $| \alpha_k J_k M_k \rangle$ , en bovendien diverse uitlopende bolgolven van in alle richtingen  $\hat{R}$  elastisch of inelastisch verstrooide Ne\*\*-atomen. In formule:

$$\Psi(\vec{r}, \vec{R}) \underset{R \rightarrow \infty}{\sim} e^{i\vec{k}_k \cdot \vec{R}} | \alpha_k J_k \mu_k \rangle + \sum_l \frac{e^{i k_l R}}{R} f_{lk}^{M_l M_k}(\hat{R}) | \alpha_l J_l M_l \rangle \quad (2.17)$$

Met het toevoegen van  $M_l$  geven we aan dat we ook de verstrooide deeltjes kunnen onderscheiden naar de projectie van  $\vec{J}_l$  op een laboratoriumvaste z-as; deze zullen we steeds kiezen parallel aan de asymptotische golfvector  $\vec{k}_k$ . De zogenoemde verstrooiingsamplitude  $f_{lk}^{M_l M_k}$  is een maat voor de kans dat



een inkomend deeltje verstrooid wordt in de richting  $\hat{R}$  en naar de toestand  $|a\rangle J_e M_e\rangle$ .

Voor de over alle strooirichtingen geïntegreerde "dubbelgepolariseerde" doorsnede  $Q_{ek}^{M_e M_k}$  geldt [MES81]:

$$Q_{ek}^{M_e M_k} = \frac{k_e}{k_k} \iint |f_{ek}^{M_e M_k}(\hat{R})|^2 d^2 \hat{R} \quad (2.18)$$

De enkelgepolariseerde doorsnede  $Q_{ek}^{M_k}$  maakt geen onderscheid tussen de magnetische subnivo's van de eindtoestand en ontstaat uit de dubbelgepolariseerde door sommatie daarover:

$$Q_{ek}^{M_k} = \sum_{M_e} Q_{ek}^{M_e M_k} \quad (2.19)$$

Hieruit kunnen we weer de totale botsingsdoorsnede vinden door sommatie over de begint toestanden met als weegfactor de bezettingsgraden  $g_k^{M_k}$  hiervan:

$$Q_{ek} = \sum_{M_k} g_k^{M_k} Q_{ek}^{M_k} \quad (2.20)$$

Deze doorsnede zullen we "ongepolariseerd" noemen wanneer alle begint toestanden gelijk bezet zijn,

$$Q_{ek}^{\text{ongep.}} = \frac{1}{2J_k+1} \sum_{M_k} Q_{ek}^{M_k} \quad (2.21)$$

#### 2.4.2. Berekening van werkzame doorsnedes uit S-matrixelementen

Het verband tussen de verstrooiingsamplitudes en S-matrixelementen volgt door vergelijking van de uitdrukkingen (2.6) en (2.17). Volgens (2.6) is de algemene oplossing van het gekoppelde kanalen probleem gelijk aan

$$\psi(\vec{r}, \vec{R}) = \frac{1}{R} \sum_a C_a \sum_b \left\{ I_{bb} |\varphi_b\rangle \delta_{ba} + \right. \\ \left. - O_{bb} |\varphi_b\rangle S_{ba} \right\} \quad (2.22)$$

waarin a en b verzamelquantumgetallen zijn.

De inlopende bolgolven,  $\frac{1}{R} I_{aa} |\varphi_a\rangle$ ,

kunnen alleen afkomstig zijn van de vlakke golf uit (2.17).

Deze vlakke golf kan worden ontwikkeld naar in- en uitlopende bolgolven [DRI85] volgens

$$e^{-i\vec{k}_k \cdot \vec{R}} |a_k\rangle |k M_k\rangle = \sum_a C_a [I_{aa} - O_{aa}] |\varphi_a\rangle \quad (2.24)$$

Wanneer wij (2.22) door herschikken schrijven als de som van de vlakke golf van (2.24) en uitlopende bolgolven volgens

$$\begin{aligned} \Psi(\vec{r}, \vec{R}) = & \frac{1}{R} \sum_a C_a [I_{aa} - O_{aa}] |\varphi_a\rangle + \\ & + \frac{1}{R} \sum_a \sum_b C_a O_{bb} (S_{ba} - \delta_{ba}) |\varphi_b\rangle \end{aligned} \quad (2.25)$$

dan zien wij dat normeringscoëfficiënten  $C_a$  vastliggen (zie appendix A1).

Vergelijking met (2.17) leert tenslotte, dat de verstrooiingsamplitude  $f_{lk}^{M_l M_k}$  gegeven wordt door

$$\begin{aligned} f_{lk}^{M_l M_k}(\hat{R}) = & - e^{-ik_l R} \times \\ & \times \langle \alpha_l | J_l M_l | \left\{ \sum_a \sum_b C_a O_{bb} (S_{ba} - \delta_{ba}) |\varphi_b\rangle \right\} \end{aligned} \quad (2.26)$$

Deze uitdrukking wordt verder uitgewerkt in appendix A1. Met (2.18)-(2.21) volgen hieruit de werkzame doorsnedes.

Als uitdrukking voor de dubbelgepolariseerde doorsnede vinden wij in appendix A1:

$$\begin{aligned}
Q_{lk}^{M_l M_k} &= \frac{\pi}{k_k^2} \sum_{P=0}^{\infty} \sum_{N_l=P-J_l}^{P+J_l} \sum_{P'=N_l-J_l}^{N_l+J_l} \sum_{N_k=P-J_k}^{P+J_k} \sum_{N_k'=P'-J_k}^{P'+J_k'} \times \\
&\times (2P+1)^{1/2} (2P'+1)^{1/2} (i)^{N_k-N_k'} \\
&\times (J_l M_l N_l M_k - M_l | P M_k) (J_l M_l N_l M_k - M_l | P' M_k) \\
&\times (J_k M_k P - M_k | N_k 0) (J_k M_k P' - M_k | N_k' 0) \\
&\times \{ \langle \pi \alpha_l J_l N_l P M_k | S | \pi \alpha_k J_k N_k P M_k \rangle - \delta_{lk} \delta_{N_l N_k} \} \\
&\times \{ \langle \pi \alpha_l J_l N_l P' M_k | S | \pi \alpha_k J_k N_k' P' M_k \rangle - \delta_{lk} \delta_{N_l N_k'} \}^*
\end{aligned} \tag{2.27}$$

waarbij  $\{ \}^*$  duidt op het nemen van de complex toegevoegde.

Op grond van symmetriebeschouwingen laten wij in appendix A2 zien dat deze uitdrukking een reële grootheid definiëert.

Bij de sommatie over  $M_l$  ter berekening van de ongepolariseerde doorsnede treedt een vereenvoudiging op t.g.v. de orthogonaliteitsrelatie [MES81, C146]

$$\sum_{M_l=-J_l}^{J_l} (J_k M_k N_l M_k - M_l | P M_k) (J_l M_l N_l M_k - M_l | P' M_k) = \delta_{PP'} \tag{2.28}$$

zodat

$$\begin{aligned}
Q_{lk}^{M_k} &= \frac{\pi}{k_k^2} \sum_{P=0}^{\infty} \sum_{N_l=P-J_l}^{P+J_l} \sum_{N_k=P-J_k}^{P+J_k} \sum_{N_k'=P-J_k}^{P+J_k} (2P+1) (i)^{N_k-N_k'} \times \\
&\times (J_k M_k P - M_k | N_k 0) (J_k M_k P - M_k | N_k' 0) \\
&\times \{ \langle \pi \alpha_l J_l N_l P M_k | S | \pi \alpha_k J_k N_k P M_k \rangle - \delta_{lk} \delta_{N_l N_k} \} \\
&\times \{ \langle \pi \alpha_l J_l N_l P M_k | S | \pi \alpha_k J_k N_k' P M_k \rangle - \delta_{lk} \delta_{N_l N_k'} \}^*
\end{aligned} \tag{2.29}$$

Ook bij sommatie over  $M_k$  kunnen we gebruik maken van de orthogonaliteitsrelatie van de Clebsh-Gordan-coëfficiënten en vinden een ongepolariseerde doorsnede volgens

$$Q_{lk}^{\text{ongep.}} = \frac{\pi}{(2J_k+1) k^2} \sum_{P=0}^{\infty} \sum_{N_l=P-J_l}^{P+J_l} \sum_{M_k=P-J_k}^{P+J_k} (2P+1) \times$$

$$\times \left| \langle \pi \alpha_l J_l N_l P M_k | S | \pi \alpha_k J_k N_k P M_k \rangle \right|^2 \quad (2.30)$$

Uit deze formules maken we op dat

- voor de berekening van de ongepolariseerde doorsnede alleen de absolute waarde van de S-matrixelementen van belang is, maar voor de overige doorsnedes ook de fase.
- bij de enkelgepolariseerde doorsnede sprake is van interferentie tussen golven met verschillende rotationele impulsmomentquantumgetallen  $N$ ,
- bij de dubbelgepolariseerde doorsnede bovendien golven met verschillende totale impulsmomentquantumgetallen  $P$  interfereren.

### 2.4.3. Experimentele gepolariseerde werkzame doorsnedes

In het experiment maken wij  $\text{Ne}^{**}$ -atomen aan met een welbepaalde projectie  $m_k$  van het elektronisch impulsmoment op een as, gegeven door de polarisatie-richting  $\hat{E}_p$  van een lineair gepolariseerde laser. Wanneer  $\hat{E}_p$  een hoek  $\beta$  maakt met de asymptotische relatieve snelheid (waarlangs de laboratoriumvaste z-as is gekozen), dan bestaat de begintoestand  $|\alpha_k J_k m_k\rangle$  t.o.v. deze laboratoriumvaste as uit een coherente som over subtoestanden  $|\alpha_k J_k M_k\rangle$  (met  $M_k$  de projectie van  $\vec{J}_k$  op de vaste z-as) volgens [DRI85]

$$|\alpha_k J_k m_k\rangle = \sum_{M_k=-J_k}^{J_k} d_{m_k M_k}^{(J_k)}(\beta) |\alpha_k J_k M_k\rangle \quad (2.31)$$

De  $d$ -functies zijn gelijk aan

$$d_{m_k M_k}^{(J_k)}(\beta) = D_{m_k M_k}^{(J_k)}(0, \beta, 0) \quad (2.32)$$

Door Driessen [DRI85] is m.b.v. (2.31) reeds afgeleid dat de begintoestand  $|\alpha_k J_k m_k\rangle$  nu aanleiding geeft tot een  $\beta$ -afhankelijke enkelgepolariseerde

seerde doorsnede  $Q_{lk}^{m_k}(\beta)$  volgens

$$Q_{lk}^{m_k}(\beta) = \sum_{M_k = -J_k}^{J_k} \{ d_{m_k M_k}^{(J_k)}(\beta) \}^2 Q_{lk}^{M_k} \quad (2.33)$$

met  $Q_{lk}^{M_k}$  gegeven door (2.29) De coherentie tussen de subnivo's, die het gevolg is van de ontbinding van  $| \alpha_k J_k m_k \rangle$  t.o.v. de vaste z-as heeft dus geen enkel effect, want wanneer we de toestand  $| \alpha_k J_k m_k \rangle$  hadden beschreven met een incoherente som over toestanden  $| \alpha_k J_k M_k \rangle$ , elk met bezettingsgraad

$$g_{lk}^{m_k M_k}(\beta) = \{ d_{m_k M_k}^{(J_k)}(\beta) \}^2 \quad (2.34)$$

dan zou dezelfde uitdrukking hebben geresulteerd.

Bij de berekening van de ongepolariseerde doorsnede uit (2.33) kunnen we gebruik maken van de relatie [MES81, C67]

$$\sum_{M_k} \{ d_{m_k M_k}^{(J_k)}(\beta) \}^2 = 1 \quad (2.35)$$

en vinden

$$Q_{lk}^{\text{ongep.}}(\beta) = \frac{1}{2J_k + 1} \sum_{M_k = -J_k}^{J_k} Q_{lk}^{M_k} \quad (2.36)$$

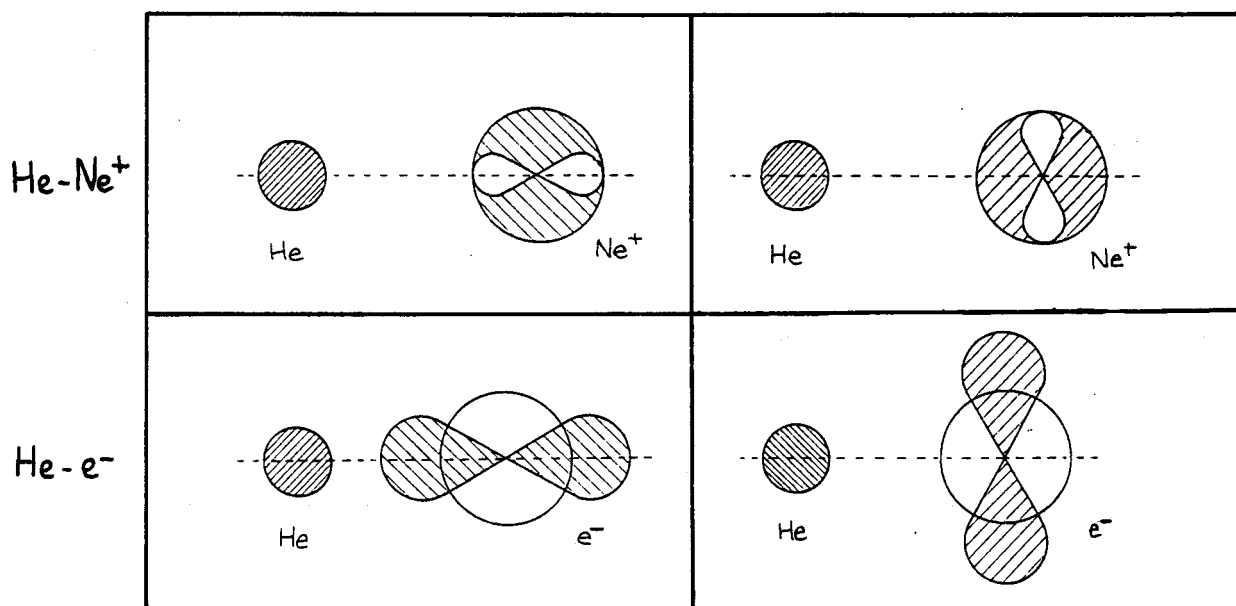
Geheel volgens verwachting hangt deze niet af van  $\beta$ : een ongepolariseerde begintoestand is t.o.v. elke as ongepolariseerd.

## 2.5. Interactiematrix $V_i$

### 2.5.1. Elementaire wisselwerkingen

Het botsende systeem  $Ne^{**}(2p^5 3p) + He(1S_0)$  kunnen wij opvatten als een drie-deeltjes systeem, bestaande uit een  $He(1S_0)$ -atoom, het  $Ne(3p)$ -valentie-electron en de  $Ne^+(2p^5)$ -core. Het  $Ne^+$  kunnen we opvatten als een "gat" dat zich in een p-orbital bevindt. Op grond daarvan kunnen we eenvoudig inzien dat er zowel bij de  $e^- - He$  als bij de  $Ne^+ - He$  wisselwerking sprake zal zijn van twee "elementaire" wisselwerkingspotentialen [HEN82].

In de figuren (2.2) zijn de met de p-orbitals gecorreleerde ladingsverdelingen van het electron en het  $Ne^+$  geschetst in twee standen, die



Figuur 2.2:  $\pi$ - en  $\sigma$ -toestanden bij de Ne<sup>+</sup>-He en de e<sup>-</sup>-He wisselwerkingen. Getekend zijn de met de p-orbitals gecorreleerde ladingsverdeling van electron en "gat".

wij kunnen karakteriseren m.b.v. de projectie van het electronisch baan-impulsmoment  $\vec{l}$ ,  $\lambda \hbar$ , op de internucleaire as.

Met een index "e" zullen wij nu het electron aanduiden en met een index "c" de core.

Wanneer  $\lambda_e = 0$ , is de lading van het electron geconcentreerd langs de internucleaire as en spreken we van een  $\sigma_e$ -toestand.

In het andere geval,  $\lambda_e = 1$ , is de electron lading geconcentreerd in een vlak loodrecht op de internucleaire as en spreken we van een  $\pi_e$ -toestand.

Voor de Ne<sup>+</sup>(2p<sup>5</sup>)-core is in de  $\pi_c$  toestand de lading juist wél geconcentreerd langs de internucleaire as, en in de  $\sigma_c$ -toestand niet.

Voor een electron in de  $\sigma_e$ -toestand treedt bij nadering van He eerder overlap op tusesn de ladingsverdeling van beide deeltjes dan voor een electron in de  $\pi_e$ -toestand.

De electron-He potentiaal  $V_\sigma^e$  voor een electron in de  $\sigma_e$ -toestand zal daarom eerder repulsief worden dan de potentiaal  $V_\pi^e$  voor een electron in de  $\pi_e$ -toestand, welke tot kleine internucleaire afstanden het karakter van lading-geïnduceerde dipoolwisselwerking (d.w.z. attractief) zal behouden.  $V_\sigma^e$  en  $V_\pi^e$  zullen wij definiëren als de matricelementen van dat gedeelte van  $V_I$  dat de e<sup>-</sup>-He wisselwerking beschrijft, tussen electron-golffuncties  $|l_e \lambda_e\rangle$  volgens

$$V_\sigma^e = \langle l_e \lambda_e = 0 | V_I^{e^- - He} | l_e \lambda_e = 0 \rangle \quad (2.37a)$$

$$V_\pi^e = \langle l_e \lambda_e = 1 | V_I^{e^- - He} | l_e \lambda_e = 1 \rangle \quad (2.37b)$$

Bovendien kunnen wij inzien dat de matrixelementen van  $V_I^{e^- - \text{He}}$  tussen toestanden met  $\lambda_c = 0$  en met  $\lambda_c' = 1$  nul zullen zijn: de interactie is cilindrischsymmetrisch om de internucleaire as en kan dus nooit een draaiing van  $\pi_c$  - naar  $\sigma_c$ -toestand veroorzaken.

Ten aanzien van de core-potentialen

$$V_{\sigma}^c = \langle \ell_c \lambda_c = 0 | V_I^{Ne^+ - He} | \ell_c \lambda_c = 0 \rangle \quad (2.38a)$$

$$V_{\pi}^c = \langle \ell_c \lambda_c = 1 | V_I^{Ne^+ - He} | \ell_c \lambda_c = 1 \rangle \quad (2.38b)$$

gelden analoge redeneringen, waarbij de karakters van  $\pi$ - en  $\sigma$ -potentialen echter juist omgekeerd zijn. Het p-gat impliceert immers een afwezigheid van lading waar de p-orbital van het electron juist de aanwezigheid daarvan aangeeft. Omdat bovendien de ladingsdichtheid van het  $Ne^+$ -ion veel minder uitgestrekt is dan die van het valentie-electron, zullen zowel  $V_{\pi}^c$ , als  $V_{\sigma}^c$  voor grotere  $R$  een attractief karakter hebben (ion-geïnduceerde dipool wisselwerking). De  $V_{\pi}^c$ -potentiaal wordt het eerst repulsief, maar bij kleinere  $R$  dan  $V_{\sigma}^c$ , opnieuw vanwege de uitgestrektheid van de ladingsverdeling.

Naast deze twee wisselwerkingen moet nog de drie-deeltjes wisselwerking worden meegenomen, d.w.z. de wisselwerking van het valentie-electron met de door de  $Ne^+$ -core in het Helium geïnduceerde dipool. Deze term is repulsief van karakter.

De electronpotentialen zijn voor internucleaire afstanden  $R < 4.5a_0$  berekend door Hennecart [HEN82]. In de  $V_{\sigma}^c$ -potentiaal nam hij ook de drie-deeltjes wisselwerking mee; de bij deze afstanden nagenoeg isotrope core-potentialen worden door hem benaderd met als uitgangspunt de dipool-polariseerbaarheid van het He-atoom.

Dat levert

$$V_{\pi}^c = V_{\sigma}^c = -C_4 / R^4 \quad (2.38)$$

met  $C_4 = 18.80 eV a_0^4$  [DAL60]. Voor kleinere internucleaire afstanden kunnen de core-potentialen worden afgeleid uit experimentele gegevens. Ze zijn door Herzberg [HER78] geconstrueerd uit het spectrum van het  $(NeHe)^+$ -molecuulion, en geparametriseerd door Haberland [HAB82] m.b.v. Morsefuncties. De parameters zijn gegeven in tabel (2.1).

Tabel 2.1: Core potentialen  $V_{\pi}^c$  en  $V_{\sigma}^c$  voor internucleaire afstanden  $R < 4.5a_0$ 

$V(R) = V_0 E(E-2)$ $E = \exp \{ \beta (1 - R/R_0) \}$ $\beta = \begin{cases} \beta_1 & (R < R_0) \\ \beta_2 & (R \geq R_0) \end{cases}$				
Potentiaal	$V_0$ [eV]	$R_0$ [ $a_0$ ]	$\beta_1$	$\beta_2$
$V_{\pi}^c$	0.043	4.38	3.0	5.3
$V_{\sigma}^c$	0.77	2.46	5.1	4.3

Tabel 2.2: Valentie-electron potentialen  $V_{\sigma}^e$  en  $V_{\pi}^e$  voor internucleaire afstanden  $R < 4.5a_0$ . Voor de  $\sigma$ -potentiaal bestaan 2 recepten, aangeduid als A resp. B.

$V_{\sigma}^e = V_0 \exp \{ -R/R_0 \}$ $V_{\pi}^e = V_0 \{ 1 + (R/R_0)^2 \}^{-2} + V_0' (R/R_0)^{-2}$			
Potentiaal	$V_0$ [eV]	$V_0'$ [eV]	$R_0$ [ $a_0$ ]
$V_{\sigma}^e$	A	0.806	-
	B	1.55	-
$V_{\pi}^e$	0.232	0.023	3.0

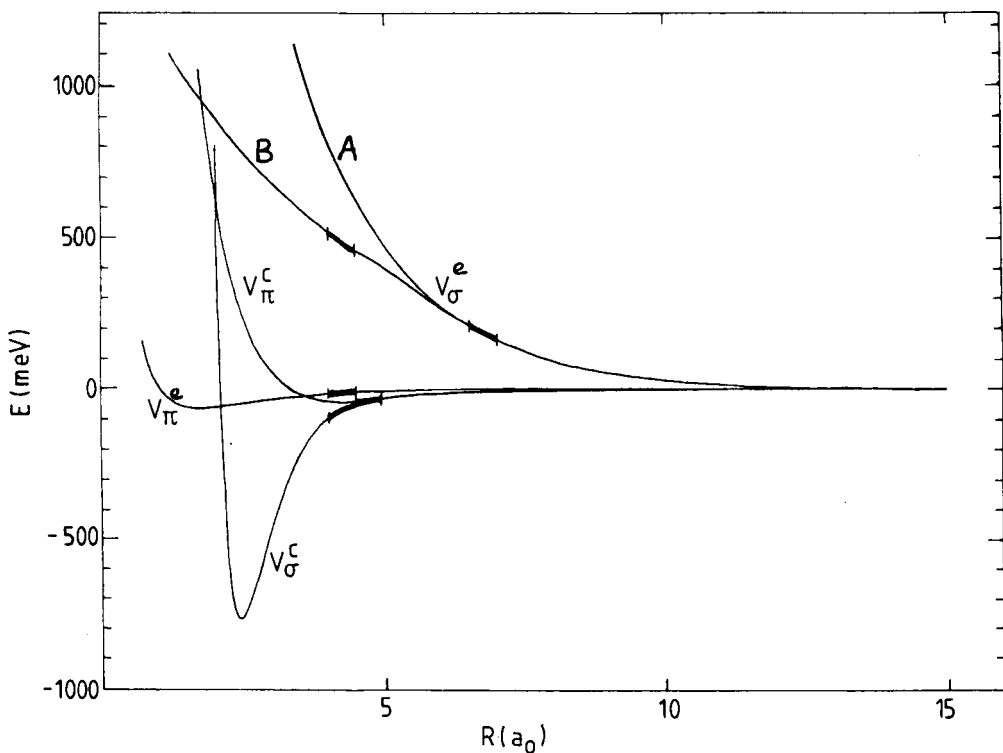


Voor internucleaire afstanden  $R < 4.5a_0$  ontbreken alleen  $V_\sigma^e$  en  $V_\pi^e$  nu nog. Hiervoor worden semi-empirische extrapolaties van de potentialen van Hennecart gebruikt. De  $\sigma$ -potentiala, die overal repulsief is, wordt voortgezet m.b.v. een repulsieve exponentiële functie.

De  $\pi$ -potentiala is voortgezet m.b.v. een functie die tot afstanden  $R \approx 2a_0$  het lading-geïnduceerde dipoolkarakter behoudt. Hierna is eveneens een (zwak) repulsieve functie toegevoegd.

De electronpotentialen zijn gegeven in tabel (2.2). Voor de  $\sigma$ -potentiala worden twee mogelijkheden gegeven; beide sluiten op het oog goed aan op de  $V_\sigma^e$  van Hennecart en onderscheiden zich alleen door hun steilheid.

In figuur (2.3) zijn alle potentialen samen weergegeven. Tevens is aangegeven waar verbindingstukken zijn gelegd m.b.v. cubic-spline functies.



Figuur 2.3: Elementaire wisselwerkingspotentialen. De aansluiting van de binnengebied potentialen ( $R < 4.5a_0$ ) op die van Hennecart geschiedt m.b.v. cubic-spline functies. De aansluitstukken zijn vetter getekend. Voor de potentiala  $V_\sigma^e$  bestaan twee varianten (zie tabel 2.2).

### 2.5.2. Samenhang tussen $V_I$ en de elementaire wisselwerkingen

In het voorgaande hebben wij ons beziggehouden met de elementaire potentialen  $V_{\pi/\sigma}^{e/c}$  die gedefiniëerd zijn t.o.v. electron- of core-toestanden  $|\lambda_e \lambda_e\rangle$  resp.  $|\lambda_c \lambda_c\rangle$ . Voor het oplossen van het gekoppelde kanalenprobleem dienen wij echter te beschikken over matrixelementen van de operator  $V_I$  t.o.v. kanaalfuncties  $|\varphi_i\rangle$ . De kanaalfuncties ontstaan door het vormen van lineaire combinaties van produkten van atomaire  $Ne^{**}$ -eigenfuncties met rotationele eigenfuncties. Het is daarom voor de berekening van  $V_I$  voldoende wanneer wij aangeven hoe de matrixelementen van  $V_I$  tussen atomaire  $Ne^{**}$ -toestanden samenhangen met de electron- en core-potentialen.

Als tussenstap kunnen hierbij Russel-Saunders  $|(l_e l_c) L S J \mu_J\rangle$ -toestanden dienen, omdat de samenhang tussen atomaire  $Ne^{**}$ -toestanden en Russel-Saunders toestanden bekend is [FEN76]. De functies  $|(l_e l_c) L S J \mu_J\rangle$  kunnen we weer schrijven als lineaire combinaties van producten van electronentoestanden  $|\lambda_e \lambda_e\rangle$ , coretoestanden  $|\lambda_c \lambda_c\rangle$  en spintoestanden  $|\Sigma \Sigma\rangle$ . Deze ontkoppeling gebruiken wij in appendix A3 om aan te tonen dat de matrixelementen van  $V_I$  op de Russel-Saunders basis in  $V_{\pi/\sigma}^{e/c}$  kunnen worden uitgedrukt volgens

$$\begin{aligned} \langle (l_e l_c) L S J \mu_J | V_I | (l_e l_c) L' S' J' \mu_J' \rangle = \\ \sqrt{\frac{10}{3}} C_1 \left\{ (V_{\pi}^e - V_{\sigma}^e) + (-)^{L+L'} (V_{\pi}^c - V_{\sigma}^c) \right\} + \\ + \frac{1}{\sqrt{3}} C_2 \left\{ (V_{\sigma}^e + 2V_{\pi}^e) + (-)^{L+L'} (V_{\sigma}^c + 2V_{\pi}^c) \right\} \end{aligned} \quad (2.39)$$

met

$$\begin{aligned} C_1 = (-)^{J-\mu_J + J' + L + S} (2J+1)^{1/2} (2J'+1)^{1/2} (2L+1)^{1/2} (2L'+1)^{1/2} \times \\ \times \begin{pmatrix} J & 2 & J' \\ -\mu_J & 0 & \mu_J \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} L & 2 & L' \\ J' & S & J \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} 1 & 2 & 1 \\ L' & 2 & L \end{Bmatrix} \delta_{SS'} \delta_{\mu_J \mu_J'} \end{aligned} \quad (2.40a)$$

$$C_2 = \frac{1}{\sqrt{3}} \delta_{JJ'} \delta_{\mu_J \mu_J'} \delta_{SS'} \delta_{LL'} \quad (2.40b)$$

De symbolen  $\begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix}$  zijn zogeheten Wigner-3J-symbolen. Deze hangen samen met Clebsch-Gordan coëfficiënten volgens [MES81,C12]

$$\begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix} = \frac{(-)^{j_1 - j_2 - m_3}}{(2j_3 + 1)^{1/2}} \begin{pmatrix} j_1 & j_2 & m_1 & m_2 & | & j_3 - m_3 \end{pmatrix} \quad (2.41)$$

De symbolen tussen accolades zijn Wigner-6J-symbolen [MES81].

We zien aan deze uitdrukkingen dat  $V_I$  diagonaal is in  $\Omega = |\mu_J|$ , wat reeds genoemd is in §2.3.2. Dit is wat resulteert van de cilindrische symmetrie van de interatomaire wisselwerking rond de internucleaire  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$  as. Een tweede opmerkelijk punt is dat de voorfactoren van  $V_{\pi/\sigma}^e$  en  $V_{\pi/\sigma}^c$  identiek zijn op een factor  $(-)^{L+L'}$  na.

$V_I$  koppelt voor  $\Omega = |\mu_J| = 0$  alleen toestanden met even  $J$  en alleen toestanden met oneven  $J$ . Dit volgt uit de Kronecker-delta  $\delta_{JJ'}$  van vergelijking (2.40b) en het Wigner-3J-symbool  $\begin{pmatrix} J & 2 & J' \\ -\mu_J & 0 & \mu_J \end{pmatrix}$  van vergelijking (2.40a). Voor  $\mu_J = 0$  is dit laatste alleen ongelijk aan nul wanneer  $J + 2 + J'$  even is [MES81, C.23a]. Toestanden met even of oneven  $J$  kunnen wij ook karakteriseren m.b.v. de eigenwaarde  $\sigma = \pm 1$  van een symmetrie-operator  $S$ , de spiegeling t.o.v. een vlak door de internucleaire as. Deze spiegeling is voor te stellen door een inversie t.o.v. de oorsprong van het  $\text{Ne}^{**}$ -atoom (gegeven door de interne pariteitsoperator  $\pi_i$ ) gevolgd door een draaiing over  $\pi$  om een as loodrecht op het spiegelvlak (de  $y$ -as). Er geldt:

$$\begin{aligned} S |\alpha_k J_k \mu_k \rangle &= A(0, \pi, 0) \pi_i |\alpha_k J_k \mu_k \rangle = A(0, \pi, 0) (-)^{l_e + l_c} |\alpha_k J_k \mu_k \rangle \\ &= (-)^{J_k - \mu_k} |\alpha_k J_k \mu_k \rangle \end{aligned} \quad (2.42)$$

zodat voor  $\Omega = |\mu_k| = 0$  atomaire  $\text{Ne}^{**}$ -toestanden met even  $J_k$  symmetrie  $\sigma = +1$ , en met oneven  $J_k$  symmetrie  $\sigma = -1$  hebben. Deze disjunctie sets zullen wij aanduiden met  $\Omega = 0+$ , resp.  $\Omega = 0-$ .

Voor  $\Omega = 0$  is er voor wat betreft de operator  $V_I$  dus sprake van behoud van reflectiesymmetrie. Deze symmetrie wordt ook niet doorbroken door de kernbeweging. Omdat de pariteit van  $\Omega$ -diabatische basisfuncties voor  $\Omega = 0$  gegeven wordt door [MAR85]

$$\pi = (-)^{P+J} \quad (2.43)$$

en  $\pi$  een behouden quantumgetal is, ontstaat er ook door de kernbeweging geen koppeling tussen  $\text{Ne}^{**}$ -toestanden met verschillende reflectiesymmetrie (dus oneven of even  $J_k$ ).

### 3. ASPECTEN VAN DE BOTSING

#### 3.1. Inleiding

In hoofdstuk 2 hebben wij een exacte beschrijving van  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$  botsingen gegeven, welke echter het karakter heeft van een black box: Gegeven de juiste inputpotentialen levert het gekoppelde kanalenprogramma de juiste werkzame doorsnedes, echter zonder dat een beeld ontstaat over welke wisselwerkingen aanleiding geven tot bepaalde inelastische doorsnedes.

In dit hoofdstuk zullen wij proberen wél een dergelijk beeld te schetsen, en de belangrijkste grootheden presenteren waarmee wij in de hoofdstukken 6 en 7 de theoretische en experimentele werkzame doorsnedes willen begrijpen. Daarbij zullen wij het verband met de gekoppelde kanalenvergelijking aangeven. Hiertoe onderzoeken wij in §3.3 tevens het gedrag van werkzame doorsnedes  $Q_{\ell k}$ .

#### 3.2. Radiële koppeling en avoided crossings

Een nadeel van de gekoppelde kanalenformulering van hoofdstuk 2 m.b.v. atomaire ( $\text{Ne}^{**}$ ) functies is dat de fysische koppelingen tussen deze toestanden, gegeven door de matrixelementen van de operator  $V_I$ , i.h.a. een niet-locaal karakter hebben. Ze bestaan immers uit steeds dezelfde lineaire combinaties van de "elementaire" potentialen  $V_{\pi/\sigma}^{e/c}$ . Inelastische overgangen lijken dan op diffuse wijze tot stand te komen.

Het is daarom zinvol over te gaan naar een basis waarin alle fysische koppelingen reeds zijn meegenomen (waarin  $V_I$  een diagonaalmatrix is). De voor de hand liggende basis bestaat uit de moleculaire of adiabatische toestanden. Deze zijn eigenvectoren van het moleculaire probleem

$$\{ H^{\text{at}, \text{Ne}^{**}} + H^{\text{at}, \text{He}} + V_I \} |\alpha_k \Omega_k\rangle = E_k^{\Omega_k}(R) |\alpha_k \Omega_k\rangle \quad (3.1)$$

bij vaste internucleaire afstand  $R$ . Deze moleculaire toestanden zullen wij noteren m.b.v. de atomaire  $\text{Ne}^{**}$  toestand  $\{\alpha\}_k$  waarnaar zij voor grote internucleaire afstanden dissociëren;  $\Omega_k$  is opnieuw de projectie van het electronisch impulsmoment op de internucleaire as. De moleculaire eigenwaardenkrommen  $E_k^{\Omega_k}(R)$  zijn geschetst in de figuren van Appendix B voor  $\Omega = 0+, 0-, 1$  en  $2$  voor internucleaire afstanden  $2a_0 < R < 15a_0$ . Zij voldoen aan de "non-crossing rule": curven van dezelfde symmetrie kunnen elkaar niet snijden. Daar waar eigenwaarde curven elkaar dicht naderen,

spreekt men in dit verband van "avoided crossings".

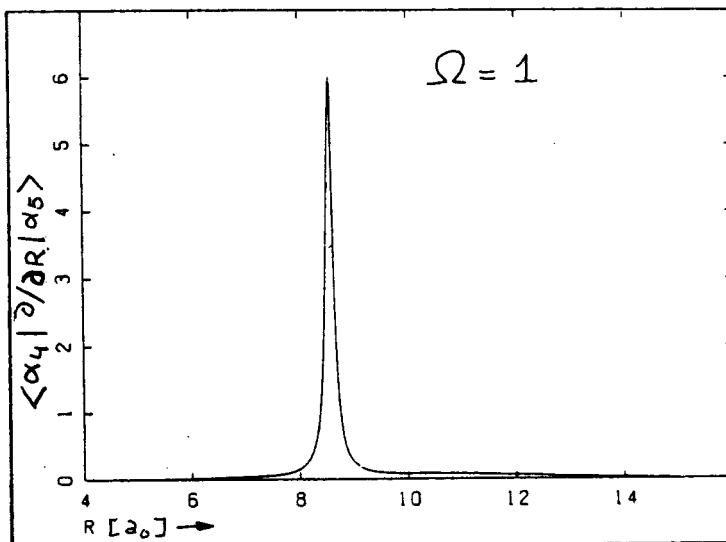
Omdat in adiabatische toestanden alle fysische wisselwerkingen al zijn meegenomen, kunnen zij niet gekoppeld worden door de operator  $V_I$ , maar alleen door de radiële en rotationele kernbeweging. Sterke, lokale radiële koppeling ontstaat nu juist bij avoided crossings. In de gekoppelde kanalenvergelijking in de adiabatische basis [MAR85],

$$F_k''(R) + k_k^2 F_k(R) = \sum_{\ell} -\frac{2\mu}{\hbar^2 R^2} \langle k | T_{\text{rot}} | \ell \rangle - \delta_{PP'} \delta_{M_P M_P'} \delta_{\Omega_{\ell} \Omega_k} \times \\ \times \sum_{\ell} 2\mu \left\{ 2 \langle k | \frac{\partial}{\partial R} | \ell \rangle \frac{\partial}{\partial R} + \langle k | \frac{\partial^2}{\partial R^2} | \ell \rangle \right\} F_{\ell}(R) \quad (3.2)$$

wordt deze radiële koppeling gegeven door de matrixelementen van de  $\frac{\partial}{\partial R}$ -operator tussen adiabatische kanaalfuncties  $|k\rangle = |\pi \alpha_k \Omega_k P M_P\rangle$  (vergelijkbaar met de  $\Omega$ -diabatische functies, maar nu moleculair van karakter i.p.v. atomair). Berekening van de  $\frac{\partial}{\partial R}$ -matrixelementen levert op dat deze sterk gepiekt zijn in de buurt van een avoided crossing (c.f. figuur (3.1)).

Dit kunnen we ook als volgt inzien:

In §2.1. werd reeds vermeld dat voor langzame botsingen de adiabatische Born-Oppenheimer benadering geldig is. In onze experimenten ligt de botsingsenergie (kinetische energie in het massamiddelpuntssysteem) in



Figuur 3.1: Radiële koppelingsmatrixelementen zijn sterk gepiekt in de buurt van avoided crossings. Hier getoond het  $\frac{\partial}{\partial R}$ -matrixelement tussen adiabatische toestanden  $|\alpha_4\rangle$  en  $|\alpha_5\rangle$  voor  $\Omega = 1$  in de buurt van  $R_C = 8.6 a_0$ .

de orde van 100 meV. De relatieve snelheid van de kernen, ca. 2500 m/s, is dan veel lager dan de electronensnelheid ( $\sigma(10^6 \text{ m/s})$ ). Wij mogen bij dit soort botsingen verwachten dat de electronengolffunctie zich voortdurend kan aanpassen bij de beweging van de kernen en de botsende deeltjes zich over de adiabatische potentiaalcurven bewegen, tenzij de moleculaire toestand sterk verandert als functie van de internucleaire afstand.

In deze benadering ontstaat dus sterke radiële koppeling tussen adiabatische toestanden wanneer deze een avoided crossing vertonen. Twee configuraties zijn hier vrijwel gedegenereerd, zodat met een overgang van de ene naar de andere toestand slechts kleine wisselwerkingsenergieën gepaard gaan. Er bestaat a.h.w. een grote kans op "doorschieten". Met dit wisselen van potentiaalcurve kunnen wij inelastische overgangen beschrijven, omdat de adiabatische potentiaalcurven dissociëren naar verschillende atomaire  $\text{Ne}^{**}$ -toestanden.

Tabel 3.1: crossing Radii van avoided crossings tussen de vermelde adiabatische potentiaalcurven.

adiabatische potentiaalcurven	$R_c [a_0]$
$\{\alpha\}_5, \{\alpha\}_7 \quad (\Omega = 0^-)$	7.0
$\{\alpha\}_4, \{\alpha\}_5 \quad (\Omega = 1)$	8.6
$\{\alpha\}_5, \{\alpha\}_6 \quad (\Omega = 1)$	7.0
$\{\alpha\}_6, \{\alpha\}_7 \quad (\Omega = 1)$	7.4

In de figuren van appendix B zien wij duidelijk avoided crossings optreden tussen de toestanden genoemd in tabel 3.1. In deze tabel zijn tevens de afstanden  $R_c$  vermeld waarbij de opsplitsing tussen de curven minimaal is. Wij zien dat voor deze toestanden avoided crossings selectief optreden voor één waarde van  $\Omega$  ten gevolge van het feit dat de adiabatische krommen voor  $\Omega = 0$  uiteenvallen in twee symmetrieklassen. Dit betekent dat wij mogen verwachten dat inelastische overgangen tussen de genoemde toestanden een oriëntatie effect tonen: het zal uitmaken of wij een He-atoom botsen met een  $\text{Ne}^{**}$ -atoom waarvan het impulsmoment  $\vec{J}$  parallel aan dan wel loodrecht op de internucleaire as staat.

In dit verslag zullen wij ons concentreren op overgangen tussen  $\text{Ne}^{**}$ -toestanden  $\{\alpha\}_4, \{\alpha\}_5, \{\alpha\}_6$  en  $\{\alpha\}_7$ , omdat wij op grond van het bovenstaande verwachten dat deze met eenvoudige modellen beschreven kunnen worden. Een dergelijk model wordt gepresenteerd in hoofdstuk 7.

### 3.3. Limieten van werkzame doorsnedes

Wanneer wij uit berekende dubbel- of enkelgepolariseerde doorsnedes conclusies willen trekken omtrent de dynamica van  $Ne^{**}$ -He botsingen, dan moeten wij in voorkomende situaties weten wat het te verwachten gedrag daarvan is. Wij kunnen dit gedrag afleiden op grond van semi-klassieke argumenten. Hierbij zullen wij in het bijzonder kijken naar maximale, minimale en gemiddelde bijdragen aan doorsnedes bij één waarde van  $P$ . Het totaal impulsmomentquantumgetal  $P$  hangt samen met de impactparameter  $b$  van de botsing via de correspondentierelatie [BEI77]

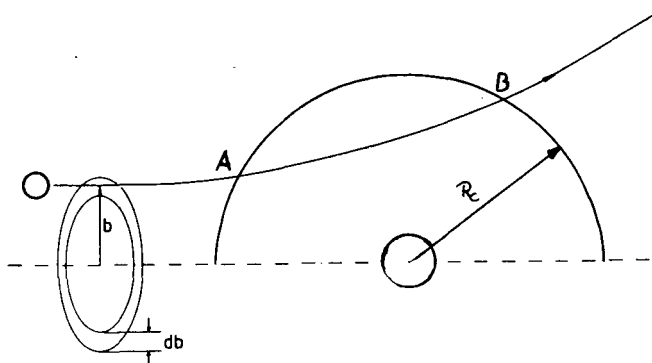
$$P + \frac{1}{2} \approx N + \frac{1}{2} \approx \frac{b}{\lambda_k} = b \frac{\mu g_k}{\hbar} \quad (3.3)$$

met  $\lambda_k$  de de Broglie-golflengte gedeeld door  $2\pi$ , en  $g_k$  de relatieve snelheid. Op deze wijze krijgen wij informatie over de verstrooiingskans langs deeltjesbanen, die geheel bepaald worden door  $b$ .

#### Inelastische doorsnedes

Beschouwen wij nu een botsingsproces waarbij inelastische overgangen, zoals in §3.2 beschreven, worden veroorzaakt door een avoided crossing tussen twee potentiaaloppervlakken.

In figuur 3.2 is de baan van een deeltje geschetst die bij de punten A en B de crossing radius snijdt. Nemen wij aan dat er bij de crossing radius een kans  $p_{ek}$  bestaat om van oppervlak  $\{\alpha\}_k$  over te gaan naar oppervlak  $\{\alpha\}_l$  (en dus een kans  $1 - p_{ek}$  op het inverse proces), dan is het niet



Figuur 3.2: Langs een deeltjesbaan zijn er twee punten (A en B) waar de crossing-radius wordt gepasseerd. De werkzame doorsnede ontstaat door integratie van het cirkeloppervlak  $2\pi b db$ , vermenigvuldigd met de overgangswaarschijnlijkheid.

moeilijk aan te tonen dat langs deze deeltjesbaan de totale kans op een inelastische overgang gegeven wordt door  $2 p_{ek}(1-p_{ek})$ . (zie paragraaf 7.1). De bijdrage aan de inelastische botsingsdoorsnede  $Q_{ek}$  van alle deeltjesbanen met impactparameter tussen  $b$  en  $b+db$  (het equivalente oppervlak dat geraakt moet worden om bij kans 1 een inelastische overgang te maken) wordt dan gegeven door (c.f. fig. 3.2)

$$dQ_{ek} = \{2 p_{ek}(1-p_{ek})\} 2\pi b db \quad (3.4)$$

met de maximale waarde

$$(dQ_{ek})_{\max} = \pi b db \quad (3.5)$$

voor  $p_{ek} = \frac{1}{2}$ . In een semiklassieke beschrijving van deze botsing moeten wij niet alleen rekening houden met de kans  $p_{ek}$  op een overgang bij A of B, maar tevens met het faseverschil  $\delta(b)$  tussen deeltjes die bij A dan wel B van oppervlak zijn gewisseld, aanleiding gevend tot interferentie effecten. Deze interferenties kunnen de bijdrage (3.4) met een factor  $2 \cos^2 \delta(b)$  modifieren tot

$$dQ_{ek}^{\text{semikl.}} = 2\pi b \{2 p_{ek}(1-p_{ek})\} 2 \cos^2 \delta(b) db \quad (3.6)$$

Via de correspondentie relatie (3.3) kunnen wij de totale inelastische doorsnede

$$Q_{ek}^{\text{semikl.}} = 4\pi \int \{2 p_{ek}(1-p_{ek})\} \cos^2 \delta(b) b db \quad (3.7)$$

ook weergeven door een sommatie over het impulsmomentquantumgetal  $P$  volgens ( $db \equiv \hbar \cdot 1$ )

$$Q_{ek}^{\text{semikl.}} = 4\pi \hbar^2 \sum_P \{2 p_{ek}(1-p_{ek})\} \cos^2 \delta(P) \left\{P + \frac{1}{2}\right\} \quad (3.8)$$

Daarmee vinden wij een maximale bijdrage per  $P$ -waarde van ( $p_{ek} = \frac{1}{2}$ ,  $\cos^2 \delta(P) = 1$ )

$$(\Delta Q_{ek})_{\max} = 2\pi \hbar^2 \left(P + \frac{1}{2}\right) \quad (3.9)$$



en een minimale bijdrage gelijk aan nul, terwijl de over enkele oscillaties van  $\cos^2 \delta(b)$  gemiddelde bijdrage voor een overgangskans  $p_{\ell k}$  gegeven wordt door

$$\langle \Delta Q_{\ell k}^{\text{semikl.}} \rangle = 2\pi \tilde{\lambda}^2 \{ 2 p_{\ell k} (1 - p_{\ell k}) \} (P + \frac{1}{2}) \leq \pi \tilde{\lambda}^2 (P + \frac{1}{2}) \quad (3.10)$$

Wanneer wij (3.8) vergelijken met uitdrukking (2.27) voor de inelastische dubbelgepolariseerde doorsnede  $Q_{\ell k}^{M_\ell M_k}$  ( $\ell \neq k$  of  $M_\ell \neq M_k$ ), dan zien wij dat wij in essentie dezelfde uitdrukking hebben afgeleid wanneer wij het over N-waarden gemiddelde (complexe) S-matrixelement gelijk stellen aan:

$$S_{\ell k} \approx \{ 2 p_{\ell k} (1 - p_{\ell k}) \}^{1/2} e^{i\delta} \quad (3.11)$$

De gemiddelde bijdrage per P-waarde aan een dubbelgepolariseerde doorsnede, gegeven door

$$\langle \Delta Q_{\ell k}^{M_\ell M_k} \rangle = 2\pi \tilde{\lambda}^2 \langle S_{\ell k}^2 \rangle (P + \frac{1}{2}) \quad (3.12)$$

leidt dan tot een overgangswaarschijnlijkheid  $p_{\ell k}$  volgens

$$2 p_{\ell k} (1 - p_{\ell k}) \approx \langle S_{\ell k}^2 \rangle$$

Voor enkel- en ongepolariseerde doorsnedes is de redenering identiek.

### Elastische doorsnedes

In de semiklassieke theorie van elastische botsingen [BEI77] wordt de elastische doorsnede  $Q^{el}$  gedefiniëerd volgens

$$\begin{aligned} Q^{el} &= 2\pi \tilde{\lambda}^2 \sum_P |e^{-2i\delta} - 1|^2 (P + \frac{1}{2}) \\ &= 8\pi \tilde{\lambda}^2 \sum_P \cos^2 \delta(p) \cdot (P + \frac{1}{2}) \end{aligned} \quad (3.13)$$

Hierin heeft  $\delta(P)$  nu de interpretatie van het faseverschil, opgelopen door verstrooide deeltjes t.o.v. deeltjes in ongestoorde banen, opnieuw aanleiding gevend tot oscillaties in de werkzame doorsnede als functie van  $P$ . De  $-1$  in (3.14) moet worden toegevoegd om te voorkomen dat  $Q^{el}$  oneindig groot wordt, omdat voor grote impactparameters het faseverschil altijd nul wordt, simpelweg omdat geen potentiaal meer wordt gevoeld. Wij verrekennen daarmee in  $Q_{el}$  in feite alleen de afwijkingen t.o.v. het ongestoorde gedrag, waarvoor  $\delta \equiv 0$ .

Voor volledig elastische verstrooiing vinden we een gemiddelde bijdrage

$$\begin{aligned} \langle \Delta Q^{el} \rangle &= 8\pi\lambda^2 \langle \cos^2(\delta) \rangle \left(P + \frac{1}{2}\right) & (3.14) \\ &= 4\pi\lambda^2 \left(P + \frac{1}{2}\right) = 4\pi b db \end{aligned}$$

wat tweemaal het beschikbare oppervlak is (een ring met straal  $b$  en breedte  $db$ ). Dit moet betekenen dat voor kleine  $P$ -waarden een diffractiebijdrage  $2\pi b db$  wordt veroorzaakt door deeltjes met een veel grotere impactparameter (waarvoor  $\langle \Delta Q^{el} \rangle = 0$ ).

De maximale waarde is nu

$$(\Delta Q^{el})_{max} = 8\pi\lambda^2 \left(P + \frac{1}{2}\right) \quad (3.15)$$

Wij zien opnieuw uit vergelijking van (3.14) en (2.27) dat de semiklassieke en quantummechanische uitdrukkingen overeenstemmen wanneer wij over  $N$ -waarden gemiddelde  $S$ -matrixelementen gelijk stellen aan

$$S^{el} \approx e^{-2i\delta(P)} \quad (3.16)$$

zodat

$$Q^{el} = 2\pi\lambda^2 \sum_P |S^{el} - 1|^2 \left(P + \frac{1}{2}\right) \quad (3.17)$$

Hierbij doet zich nu de wat merkwaardige situatie voor dat wanneer de verstrooiing volkomen inelastisch is en de  $S$ -matrixelementen  $S^{el}$  dus gelijk aan nul, er toch een bijdrage aan de elastische doorsnede ontstaat gelijk aan

$$\langle Q^{el} \rangle_{min} = 2\pi\lambda^2 \left(P + \frac{1}{2}\right) = 2\pi b db \quad (3.18)$$

Hierin herkennen wij echter weer de diffractiebijdrage van deeltjes met grote impactparameter, die nooit inelastisch kunnen worden verstrooid. De bijdrage (3.18) moeten wij dus beschouwen als het minimale gemiddelde gedrag van elastische doorsnedes in het gebied van P-waarden waar ook inelastische verstrooiing plaatsvindt.

### 3.3. Rotatiekoppeling

#### 3.3.1. $\Omega$ -opsplitsing en behoud van $\Omega$

Wanneer wij in een experiment de in paragraaf 3.2 genoemde oriëntatie-effecten willen onderzoeken, dan zullen wij het quantumgetal  $\Omega$  moeten variëren. In de praktijk kunnen wij niet meer doen dan op grote internucleaire afstand een  $\text{Ne}^{**}$  deeltje te produceren met een gericht impulsmoment  $\vec{J}_k$ . Asymptotisch is de waarde van  $\Omega$  dan goed bepaald, maar tijdens de botsing zal door draaiing van de internucleaire as de waarde van  $\Omega$  steeds veranderen, tenzij er een voorkeur bestaat tot het behouden van de stand van  $\vec{J}_k$  t.o.v. de internucleaire as.

Deze voorkeur komt tot uiting in de  $\Omega$ -opsplitsing van de adiabatische potentiaalcurven, hier gedefinieerd als

$$\Delta E_k^{\Omega\Omega'}(R) = \frac{1}{2} \{ E_k^{\Omega}(R) - E_k^{\Omega'}(R) \} \quad (3.19)$$

Bewegen wij ons van de adiabatische curve  $E_k^{\Omega}$  naar de curve  $E_k^{\Omega'}$ , dan moet dit energieverval worden gecompenseerd door een verandering in de rotationele energie. Voor een deeltje dat met hoeksnelheid  $\dot{\phi}$  beweegt, wordt deze gegeven door

$$E_{\text{rot}} = \frac{\vec{N}^2}{2\mu R^2} = \frac{1}{2} \mu R^2 \dot{\phi}^2 \quad (3.20)$$

Wij weten dat het totaal impulsmoment  $P$  tijdens de botsing een behouden grootheid is. Daar

$$|P-J| \leq N \leq P+J \quad (3.21)$$

kan het quantumgetal  $N$  hoogstens met  $2J$  veranderen, gepaard gaande met een verandering in rotationele energie

$$\Delta E_{\text{rot}} \leq \frac{N(N+1) - (N-2J)(N-2J+1)}{2\mu R^2} \hbar^2$$

$$\approx \frac{2J N}{2\mu R^2} \hbar^2 \quad (3.22)$$

Gebruikmakend van de uit (3.20) volgende correspondentierelatie voor het rotationeel impulsmoment

$$\langle \vec{N}^2 \rangle = N(N+1) \hbar^2 \approx (\mu R \dot{\phi})^2 R^2 \quad (3.23)$$

kunnen wij dit ook weergeven als

$$\Delta E_{\text{rot}} \leq J \hbar \dot{\phi} \quad (3.24)$$

Wij verwachten dat wanneer de mogelijke verandering in rotatie-energie veel kleiner is dan de  $\Omega$ -opsplitsing tussen adiabatische potentiaalcurven,  $\Omega$  bij benadering behouden is. Wanneer daarentegen het omgekeerde waar is, kunnen wij aannemen dat de waarde van  $\Omega$  op elk moment tijdens de botsing volgt uit de geometrische draaiing van de internucleaire as alleen.

Deze redenering vinden wij terug in de gekoppelde kanalenvergelijking in de adiabatische basis. In vergelijking (3.2) moeten wij de eigenvectoren van de moleculaire Hamiltoniaan  $H^{\text{mol}} = H^{\text{at, Ne}^{**}} + H^{\text{at, He}} + V_I$  (welke welbepaalde  $\Omega$  hebben) vergelijken met de eigenvectoren van dezelfde operator, aangevuld met de rotatiekoppelingsmatrix  $T_{\text{rot}}$ , die de menging van  $\Omega$ -toestanden veroorzaakt. In de adiabatische basis is  $H^{\text{mol}}$  diagonaal in  $\Omega$ ,  $T_{\text{rot}}$  daarentegen niet-diagonaal. De koppelingsmatrixelementen zijn van de grootte (vergelijk uitdrukking 2.15)

$$(T_{\text{rot, adiab.}})_{\Omega\Omega'} \approx \frac{\{J(J+1)\}^{1/2} \{P(P+1)\}^{1/2} \hbar^2}{2\mu R^2} \quad (|\Omega - \Omega'| = 1) \quad (3.25)$$

wanneer wij  $\{J(J+1)\} \hbar^2$  nu op vatten als een overaan de adiabatische toestand bijdragende atomaire toestanden gemiddelde waarde van  $\vec{J}^2$ .

De eigenvectoren van  $H^{\text{mol}} + T_{\text{rot}}$  hebben nu bij benadering welbepaalde  $\Omega$  wanneer de opsplitsing tussen de diagonaalelementen (gelijke  $\Omega$ ) veel groter is dan de koppelingselementen ( $\Omega \neq \Omega'$ ). De opsplitsing tussen de diagonaalelementen zal i.h.a. minimaal zijn voor adiabatische toestanden behorend bij dezelfde atomaire  $\text{Ne}^{**}$ -toestand, en dan gelijk aan de eerder genoemde  $\Omega$ -opsplitsing.  $\Omega$  is dus bij benadering behouden wanneer

$$\Delta E_k^{\Omega \Omega'} \geq \frac{\{j(j+1)\}^{1/2} \{P(P+1)\}^{1/2} \hbar^2}{2\mu R^2} \quad (|\Omega - \Omega'| = 1) \quad (3.26)$$

Voor iets grotere waarden van  $P$ , waarvoor  $\{P(P+1)\}^{1/2} \approx P \approx N$  zien wij uit (3.22) dat wij ook hier een vergelijking maken tussen  $\Omega$ -opsplitsing en verandering van rotationele energie.

### 3.4.2. Bepaling van een locking-radius

Het verschijnsel  $\Omega$ -opsplitsing zal alleen bij kleinere internucleaire afstanden belangrijk zijn. We zouden dan kunnen veronderstellen dat we een straal kunnen definiëren (de "locking-radius"  $R_L$ ), waarbinnen  $\Omega$  een behouden grootheid is; wanneer deze straal beduidend groter is dan de crossing radii van tabel 3.1, mogen wij verwachten dat de asymptotische waarde van  $\Omega$  direkt bepalend is voor het wel of niet inelastisch verstrooien van  $\text{Ne}^{**}$ -deeltjes naar een bepaalde toestand.

Volgens paragraaf 3.2 bepaalt de waarde van  $\Omega$  immers of een avoided crossing wordt gepasseerd.

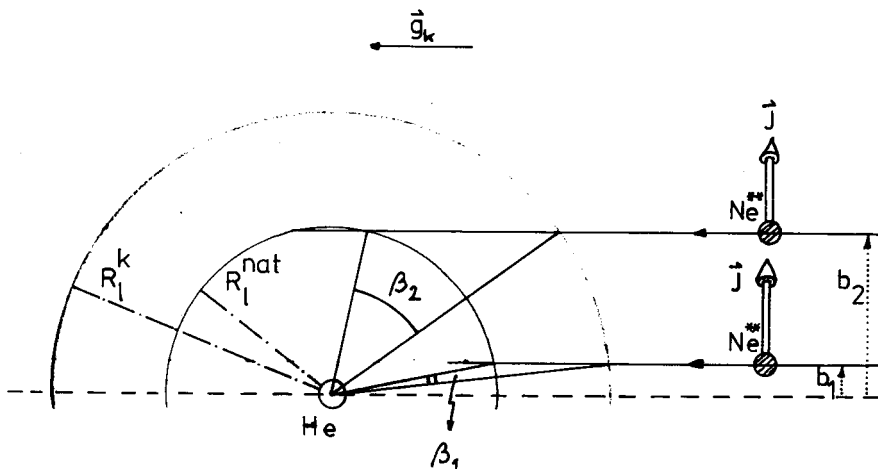
Het optreden van "locking" kan worden onderzocht door te kijken naar dubbelgepolariseerde doorsnedes  $Q_{\ell k}^{M_\ell M_k}$  waarbij wij begin- en eindtoestand gelijk kiezen ( $\ell = k$ ). Treedt namelijk in het geheel geen locking op, dan verandert de stand van  $\vec{j}_k$  t.o.v. een ruimte-vast assenstelsel niet, en dus moeten de elastische doorsnedes ( $M_\ell = M_k$ ) zich gedragen volgens de in paragraaf 3.3 genoemde elastische limiet

$$\langle \Delta Q_{kk}^{M_k M_k}(P) \rangle \approx 4\pi \lambda^2 (P + \frac{1}{2})$$

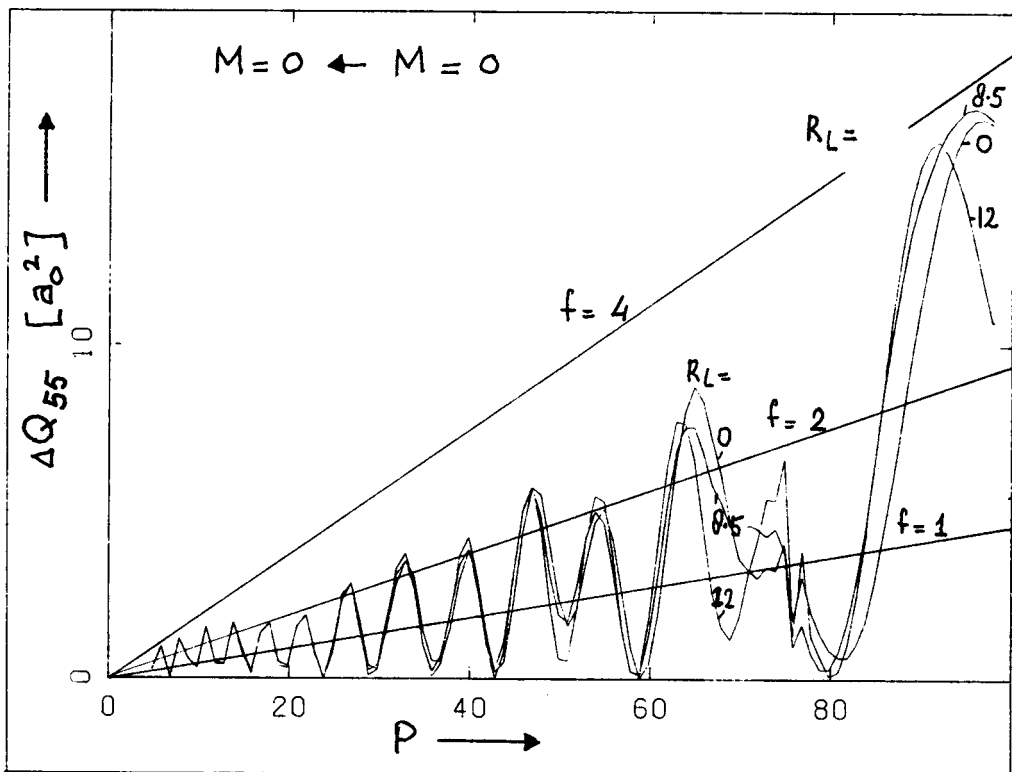
terwijl de inelastische doorsnedes ( $M_\ell \neq M_k$ ) gelijk aan nul zijn.

Wij kunnen bovendien uit theoretische, dubbelgepolariseerde doorsnedes een locking radius bepalen door in de berekening van de S-matrix een "kunstmatige" locking radius aan te leggen (waarbinnen wij rotatiekoppeling dus uitschakelen). Zolang deze kunstmatige lockingstraal kleiner is dan de "natuurlijke",  $R_L^{\text{nat.}}$ , zullen wij geen verandering in de bijdrage per P-waarde aan de werkzame doorsnedes constateren. Zodra echter de kunstmatige lockingstraal de grootste wordt, zullen er veranderingen moeten optreden in de bijdrages. Deze veranderingen zijn het sterkst voor P-waarden die corresponderen met deeltjesbanen die ongeveer raken aan de natuurlijke locking radius. Voor deze deeltjesbanen is de veroorzaakte "kunstmatige" draaiing van het impulsmoment namelijk maximaal (c.f. figuur 3.3).

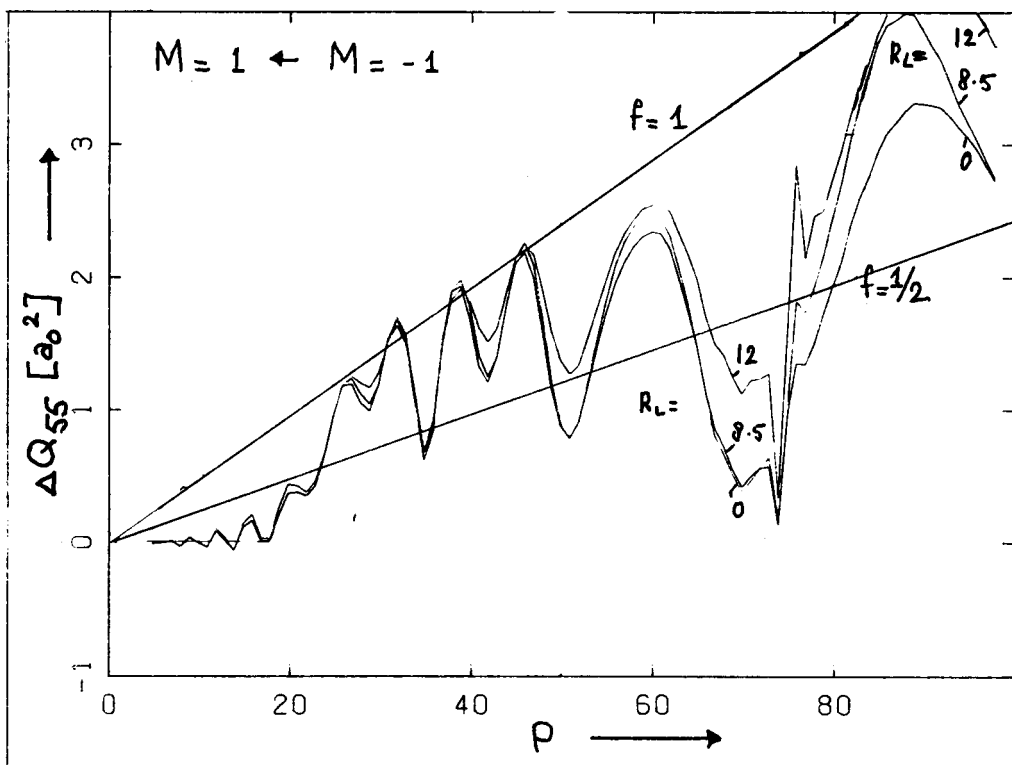
Wij hebben als testcase werkzame doorsnedes berekend bij verschillende waarden van de kunstmatige locking radius  $R_L$ . Vanwege rekentijdbeperkingen hebben wij alleen de atomaire  $\{\alpha\}_5$ -toestand in de berekening betrokken (alle fysische koppelingen met andere atomaire toestanden zijn a.h.w. uitgeschakeld). Deze  $\{\alpha\}_5$ -toestand is daarom niet meer vergelijkbaar met de adiabatische  $\{\alpha\}_5$ . In de figuren 3.4 zijn de bijdragen per P-waarde aan de dubbelgepolariseerde doorsnedes  $Q_{55}^{\text{HH}'}$  uitgezet voor  $R_L = 0, 8.5$  en  $12a_0$ . Tevens zijn lijnen ingetekend die een bijdrage aangeven evenredig met  $2\pi \tilde{\lambda}^2 (P + \frac{1}{2})$ , enz.



Figuur 3.3: Bij het aanleggen van een "kunstmatige" locking-radius  $R_L^k$  groter dan de "natuurlijke"  $R_L^{\text{nat}}$  ontstaat een extra hoekverdraaiing  $\beta$  van het elektronisch impulsmoment t.o.v. het ruimte-vaste assenstelsel. Deze is maximaal voor deeltjesbanen die langs  $R_L^{\text{nat}}$  scheren ( $\beta_1 \ll \beta_2$ ).



a)



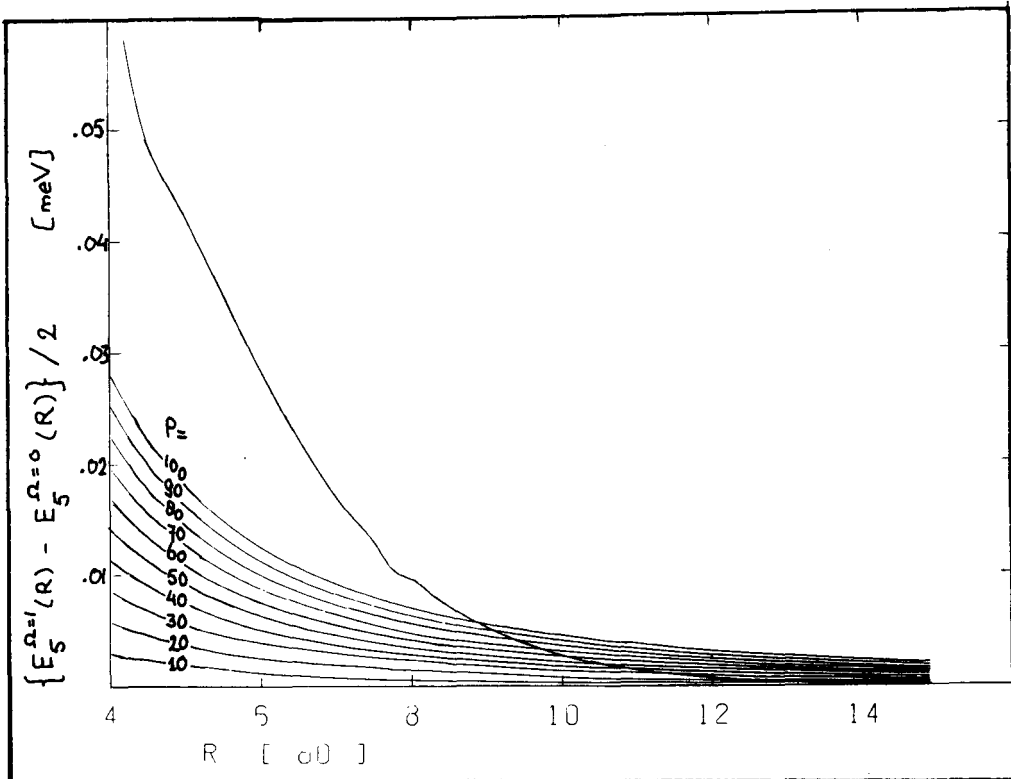
b)

Figuur 3.4: Bijdrage per  $P$ -waarde aan dubbelgepolariseerde doorsnedes  $Q_{55}$ , berekend met verschillende "natuurlijke" lockingstralen  $R_L = 0, 8.5$  en  $12a_0$ . De lijnen duiden een bijdrage van een fractie  $f \cdot 2\pi\lambda^2(P+\frac{1}{2})$  aan. Voor  $70 < P < 95$  treden verschillen op tussen krommen, berekend met  $R_L = 0$  resp.  $R_L = 8.5a_0$ .  
fig. a: elastische doorsnede; fig. b: inelastische doorsnede

Wij constateren uit de figuren:

- i) dat in dit systeem locking in zeer sterke mate optreedt, daar de elastische ( $M=0 \leftarrow M=0$ ) doorsnedes in het gebied  $0 < P < 70$  gemiddeld de minimale bijdrage  $2\pi\lambda^2(P+\frac{1}{2})$  tonen, terwijl de inelastische doorsnedes dicht tegen hun maximale waarde  $\pi\lambda^2(P+\frac{1}{2})$  aanliggen.
- ii) dat voor  $75 < P < 95$  afwijkingen gaan optreden tussen de doorsnedes, berekend met  $R_L = 0$  resp.  $R_L = 8.5a_0$ . Wanneer wij aannemen dat de deeltjesbanen voor de impactparameters  $b > 6.5a_0$  grotendeels recht zijn, dan volgt uit (3.3) dat  $R_L^{nat.}$  ligt tussen  $6.5a_0 < R_L^{nat.} < 8.5a_0$  (botsingsenergie 300 meV, dus  $\lambda = 0.086 a_0$ ).

In figuur 3.5 vergelijken wij nu de matrixelementen van de rotatie-operator  $T_{rot}$ , met de omega-opsplitsing tussen de in de berekening gebruikte  $\{ \alpha \}_5$ -potentiaalcurven. In dit simpele geval zijn de matrix-



Figuur 3.5:  $\Omega$ -opsplitsing tussen in de berekening gebruikte potentiaal-krommen in vergelijking met matrixelementen van de rotatie-operator  $T_{rot}$  (vergelijking 3.27). Bij  $R = 9a_0$  wordt  $\Omega$ -opsplitsing belangrijker dan rotatiekoppeling.



elementen van  $T_{rot}$  voor  $\Omega \neq \Omega'$  exact gegeven door

$$(T_{rot})_{\Omega\Omega'} = \frac{\{P(P+1)\}^{1/2} \hbar^2}{\mu R^2} \quad (3.27)$$

(vgl. uitdrukking (2.15) met  $J_5 = 1$ ).

Wij zien dat een natuurlijke locking radius  $6.5 a_0 < R_L^{nat} < 8.5 a_0$  in redelijke mate overeenstemt met de internucleaire afstand waarbinnen de matricelementen van  $T_{rot}$  voor  $P < 100$  klein worden t.o.v.  $\Delta E_5^{\Omega\Omega'}$ .

Daarmee hebben wij in de vergelijking van  $\Omega$ -opsplitsing en rotatie-koppeling dus inderdaad een bruikbaar criterium gevonden ter bepaling van de natuurlijke locking radius.

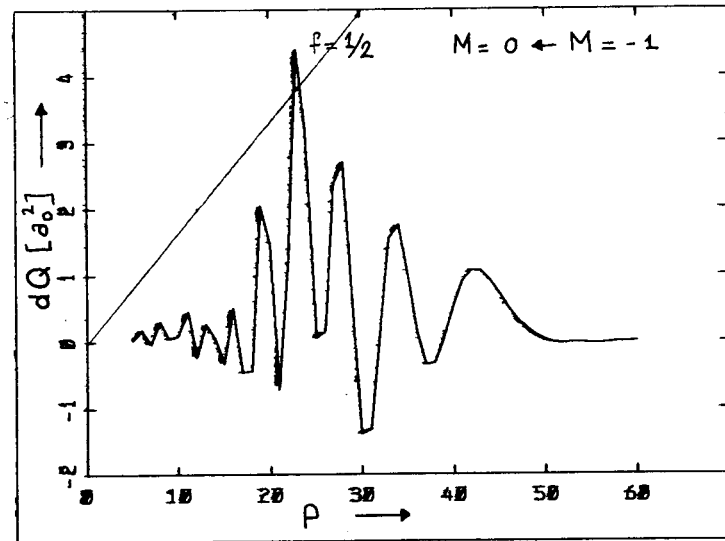
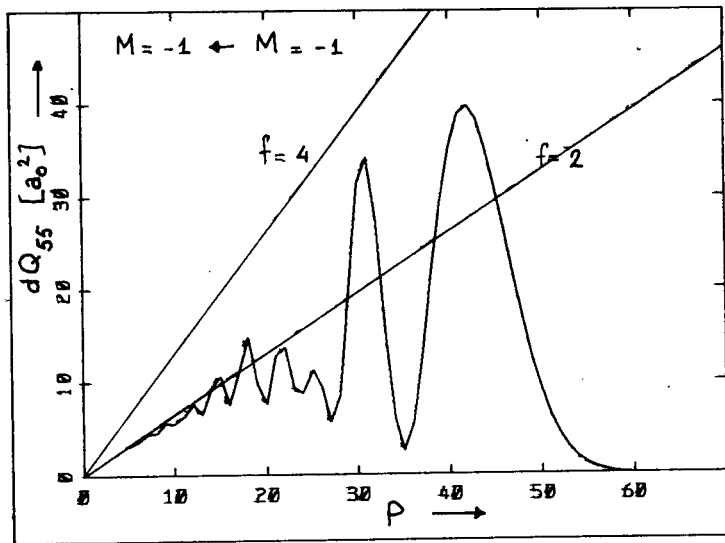
In de volgende paragraaf zullen wij zien of de  $\Omega$ -opsplitsing tussen de adiabatische  $\{\alpha\}_5$ -potentiaalkrommen (die sterk verschilt van  $\Delta E_5^{\Omega\Omega'}(R)$  tussen de in deze berekening gebruikte potentiaalkrommen) ook op het optreden van locking wijst.

### 3.4.3. Locking in het $Ne^{**} + He$ systeem

Met figuur (3.6) verlaten wij weer het simpele 2-nivo systeem van paragraaf 3.3.2 en onderzoeken de aanwezigheid van locking bij het volledige  $Ne^{**}$ -He systeem.

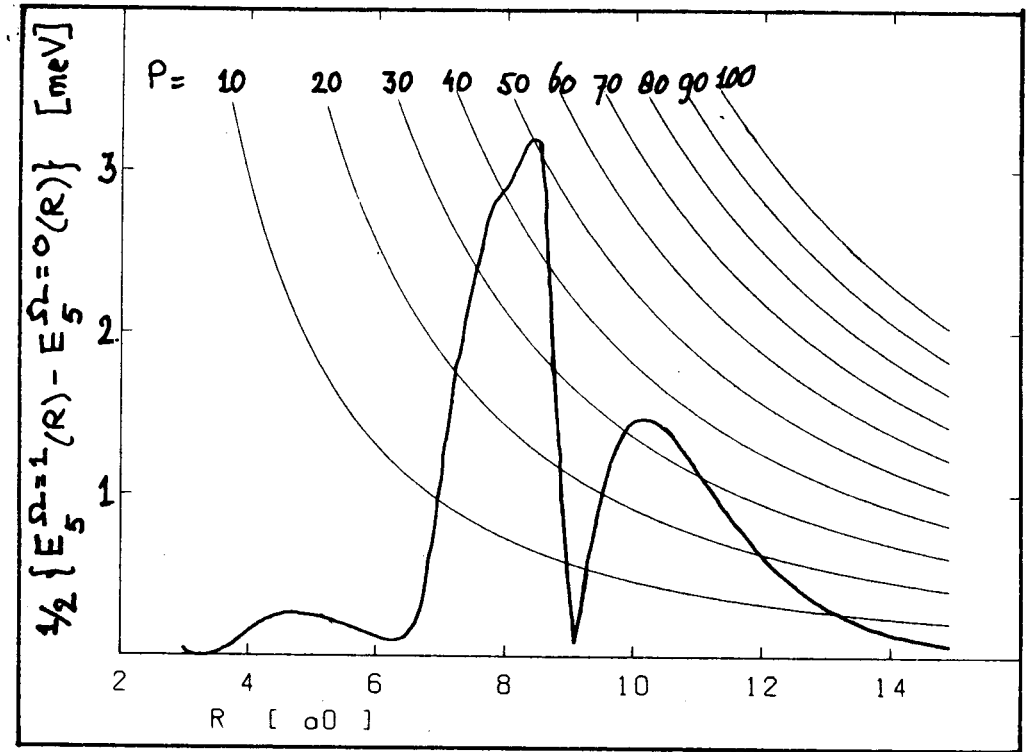
De dubbelgepolariseerde doorsnedes  $Q_{55}^{M'M'}$  laten zien dat voor de adiabatische toestand  $\{\alpha\}_5$  de situatie afwijkt van paragraaf 3.4.2. Wij zien dat de elastische doorsnede ( $M' = -1 \leftarrow M = -1$ ) zich nu grotendeels gedragen volgens de elastische limit  $\Delta Q_{55}^{el} \sim 4\pi\lambda^2(P + \frac{1}{2})$ , terwijl de inelastische doorsnedes gemiddeld ruim onder de limiet  $\Delta Q_{55}^{M'M} \sim \pi\lambda^2(P + \frac{1}{2})$  blijven, uitgezonderd in het gebied van P-waarden  $15 < P < 30$ . In figuur (3.7) vergelijken wij de opsplitsing tussen de adiabatische toestanden  $\{\alpha_5, \Omega = 0\}$  en  $\{\alpha_5, \Omega = 1\}$  met rotatiekoppelingselementen ter grootte  $\{P(P+1)\}^{1/2} \hbar^2 / \mu R^2$ . Wij zien dat van locking inderdaad nauwelijks sprake zal zijn, behalve voor kleine P-waarden  $0 < P < 30$  en internucleaire afstanden  $7a_0 < R < 12a_0$ .

Meer algemeen geldt dat voor de adiabatische toestanden  $\{\alpha\}_5, \{\alpha\}_7, \{\alpha\}_9$  en  $\{\alpha\}_{11}$  de draaiing van  $\vec{J}_k$  t.o.v. de internucleaire as grotendeels wordt bepaald door de geometrie van de botsing, waarbij locking een ondergeschikte rol speelt, voor internucleaire afstanden groter dan de waarden gegeven in tabel (3.2).



10

b)



39

Figuur 3.7:  $\Omega$ -opsplitsing tussen de adiabatische  $\{\alpha\}_5$ -potentiaalkrommen in vergelijking met matrixelementen  $\{P(P+1)\}^{1/2} \hbar^2 / 2\mu R^2$

Figuur 3.6: Bijdrage per P-waarde aan dubbelgepolariseerde doorsnedes  $Q_{55}$ .

Zij tonen een grotendeels elastisch gedrag, uitgezonderd voor  $20 < P < 30$ . De betekenis van de lijnen is genoemd bij fig. 3.4.

fig. a: elastische doorsnede; fig. b: inelastische doorsnede

toestand	$R_m$
$\{ \alpha \beta_4 \}$	8
$\{ \alpha \beta_5 \}$	2
$\{ \alpha \beta_6 \}$	3
$\{ \alpha \beta_7 \}$	7

Tabel 3.2: internucleaire afstand  $R_m$  waarbuiten locking een ondergeschikte rol speelt voor de adiabatische toestanden  $\{ \alpha \beta_4 \}$ ,  $\{ \alpha \beta_5 \}$ ,  $\{ \alpha \beta_6 \}$ ,  $\{ \alpha \beta_7 \}$ .

Deze waarden vergelijkend met de crossing radii van tabel 3.1, zien wij dat de laatste zich in het gebied bevinden waar locking onbelangrijk is. Wij moeten bij het interpreteren van werkzame doorsnedes voor overgangen tussen de toestanden  $\{ \alpha \beta_4 \}$ ,  $\{ \alpha \beta_5 \}$ ,  $\{ \alpha \beta_6 \}$ , en  $\{ \alpha \beta_7 \}$  daarom volledig rekening houden met geometrische effecten, terwijl wij locking als minder belangrijk kunnen beschouwen.

### 3.4. Omkeerpunten

Wanneer wij de inelastische overgangen tussen Ne\*\* nivo's  $\{ \alpha \beta_4 \}$ ,  $\{ \alpha \beta_5 \}$ ,  $\{ \alpha \beta_6 \}$ , en  $\{ \alpha \beta_7 \}$  willen beschrijven met behulp van avoided crossings, dan is het voor de interpretatie van berekende doorsnedes essentieel te weten voor welke impactparameters (dus voor welke P-waarden) deze avoided crossings kunnen worden bereikt. Wij verwachten alleen bijdragen aan de doorsnedes voor P-waarden waarvoor de omkeerpunten binnen de crossing-radius liggen.

Deze omkeerpunten zijn bovendien van belang wanneer wij het effect van het toevoegen van core/electronpotentials (paragraaf 2.5) op de werkzame doorsnedes willen bestuderen; ook hier geldt dat alleen verschillen tussen berekeningen met verschillende sets binnengebied potentials mogen worden toegekend aan het veranderen van deze potentials, voor P waarden waarvoor dit binnengebied ook werkelijk wordt bereikt.

Ten derde kunnen wij alleen effecten van locking verwachten voor impactparameters waarbij wij internucleaire afstanden bereiken kleiner dan de stralen genoemd in tabel (3.2).

Omkeerpunten (afstanden van dichtste nadering) op adiabatische potentiaalcurven  $E_k^{\mathcal{R}}(\mathcal{R})$  vinden wij door het (numeriek) zoeken van nulpunten

van de vergelijking

$$E - E_k^{\Omega}(R) - \frac{N(N+1)\hbar^2}{2\mu R^2} = 0 \quad (3.28)$$

waarin  $E$  de totale energie van het botsende systeem is. De derde term in vgl. (3.28) is de centrifugaal potentiaal. Voor waarden van het rotationeelquantumgetal  $N \geq 20$ , mogen wij  $N$  vervangen door het totaal impulsmomentquantumgetal daar

$$|N - j_k| \leq P \leq N + j_k \quad (3.29)$$

en voor het  $\text{Ne}^{**}\text{-He}$  systeem  $j_k \leq 3$ . Wanneer de centrifugaalpotentiaal alleen bepalend is voor de ligging van het omkeerpunt  $R_T$ , dan verwachten wij de relatie

$$R_T = P \tilde{\alpha} \quad (3.30)$$

In figuur (3.8) zijn van een  $\text{Ne}^{**}$ -deeltje met een kinetische energie van 100 meV t.o.v. de toestand  $\{\alpha\}_5$ , de omkeerpunten geschetst op de adiabatische potentiaalcurven  $\{\alpha\}_4$ ,  $\{\alpha\}_5$ ,  $\{\alpha\}_6$  en  $\{\alpha\}_7$ . Deze adiabatische potentiaalcurven werden berekend gebruikmakend van  $V_{\sigma}^e$  potentiaal B (gegeven in tabel 2.2). De waarde van 100 meV komt overeen met de typische botsingsenergie in onze experimenten.

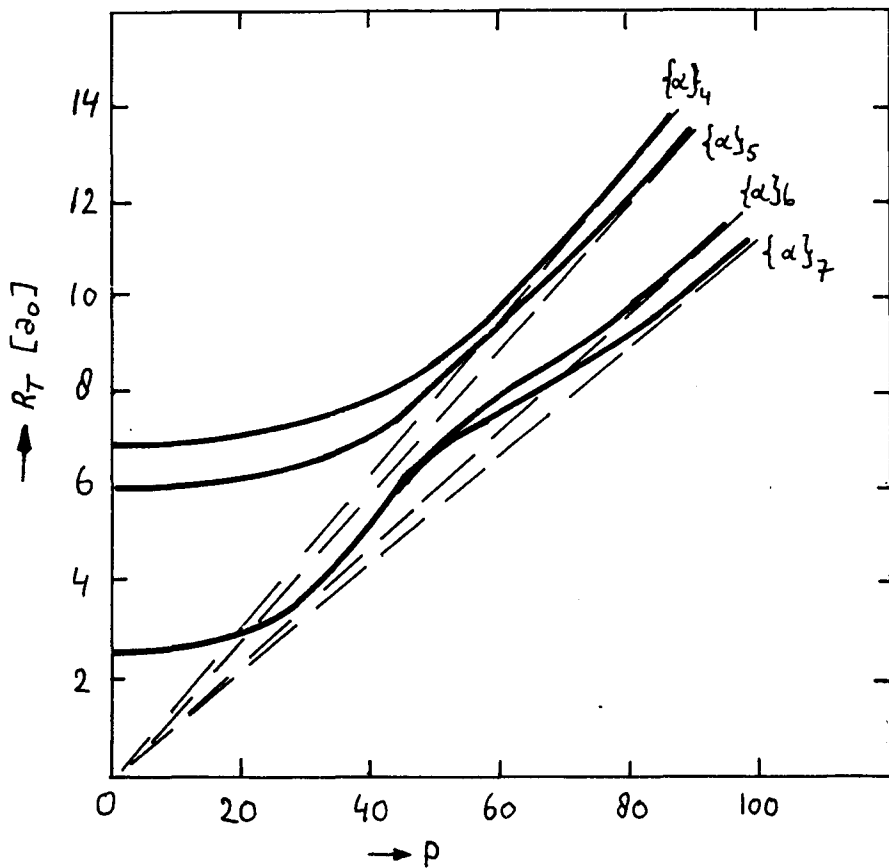
Wij zien in de figuren dat voor  $P$ -waarden groter dan 50 de omkeerpunten in hoofdzaak bepaald worden door de centrifugaalpotentiaal. Op de potentiaalcurven van de toestanden  $\{\alpha\}_4$  en  $\{\alpha\}_5$  zullen wij nooit het gebied  $R < 6a_0$  bereiken bij de beschouwde botsingsenergieën.

Op de adiabatische  $\{\alpha\}_6$  en  $\{\alpha\}_7$ -krommen is dit slechts het geval voor  $P$ -waarden  $P < 40$ . In de figuur hebben wij geen onderscheid gemaakt naar  $\Omega$ , omdat ook voor de ligging van omkeerpunten  $\Omega$ -opsplitsing van ondergeschikt belang is.

In tabel (3.4) tenslotte zijn de  $P$ -waarden gegeven waarbij de omkeerpunten liggen bij de crossing radii van tabel (3.1). Deze zullen wij gebruiken in de hoofdstukken 6 en 7.

Tabel 3.4: P-waarden waarbij het omkeerpunt op de aangegeven potentiaalcurve (laatste kolom) samenvalt met de crossing radius (zie tabel (3.1)) tussen de vermeldde potentiaalcurven.

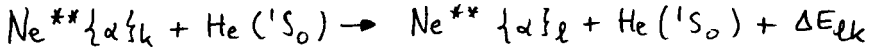
curve crossing tussen	$R_T$ [ $\alpha_0$ ]	P	potentiaalcurve
$\{\alpha\}_4, \{\alpha\}_5$	8.6	50 50	$\{\alpha\}_4$ $\{\alpha\}_5$
$\{\alpha\}_5, \{\alpha\}_6$	7.0	40 50	$\{\alpha\}_5$ $\{\alpha\}_6$
$\{\alpha\}_5, \{\alpha\}_7$	7.0	40 50	$\{\alpha\}_5$ $\{\alpha\}_7$
$\{\alpha\}_7, \{\alpha\}_6$	7.4	55 55	$\{\alpha\}_6$ $\{\alpha\}_7$



Figuur 3.8: Omkeerpunten op de adiabatische potentiaalkrommen  $\{\alpha\}_4, \{\alpha\}_5, \{\alpha\}_6, \{\alpha\}_7$  bij een kinetische energie  $E_0 = 100$  meV t.o.v.  $\{\alpha\}_5$ . De streeplijnen geven relatie (3.30) weer. Voor  $P > 50$  worden de omkeerpunten hoofdzakelijk bepaald door de centrifugaal-potentiaal.

#### 4. EXPERIMENTEEL

Het botsingsproces van (2.1)



wordt bestudeerd met de opstelling "Minibundel I". Met deze opstelling kunnen werkzame doorsnedes voor inelastische  $\{ \alpha \}_l \leftarrow \{ \alpha \}_k$  overgangen worden bepaald uit de fluorescentiestraling, die vrijkomt bij het verval van de kortlevende  $\text{Ne}^{**} \{ \alpha \}_k$  en  $\{ \alpha \}_l$ -toestanden.

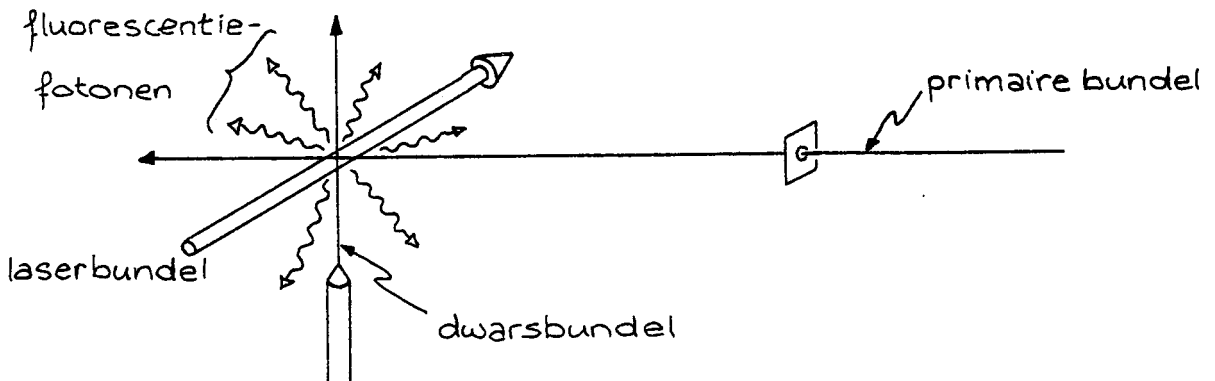
De opstelling is reeds meerdere malen beschreven [RUY84, BEU85, DRI85] zodat wij ons in dit hoofdstuk vaak zullen beperken tot het noemen van de belangrijkste punten.

##### 4.1. Experimentele processen

De Minibundel-I is een gekruiste bundels-opstelling. Er spelen drie bundels een rol:

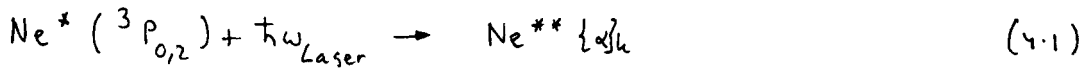
- een gecollimeerde hoofdbundel van Ne-atomen, afkomstig uit een thermische metastabiele bron [DRI83]. Een fractie van de Ne-atomen bevindt zich in één van de twee metastabiele  $\text{Ne}^*(2p^5 3s, {}^3P_{0,2})$  toestanden.
- een eveneens gecollimeerde laserbundel
- een He-dwarsbundel, gevormd door een ongecollimeerde supersone expansie uit een nozzle.

De situatie is geschetst in fig. (4.1).

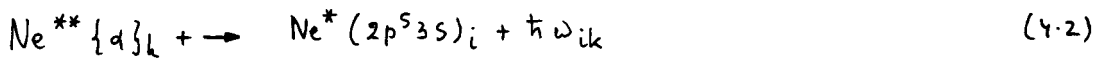


Figuur 4.1: Hoofd-, dwars- en laserbundel snijden elkaar in het botsingscentrum.

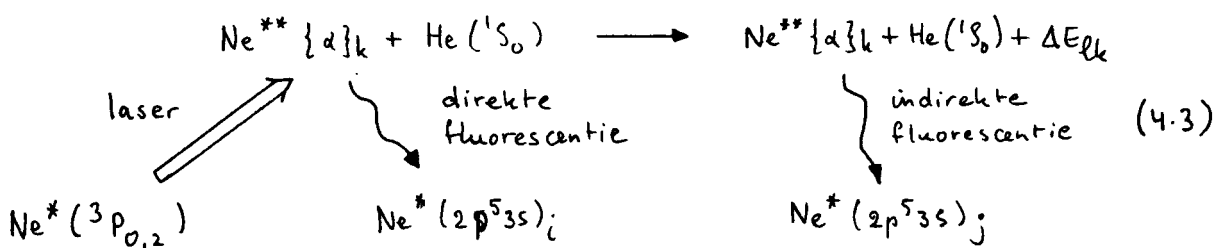
De hoofd- en laserbundel snijden elkaar loodrecht. Metastabiele  $\text{Ne}^*(^3P_{0,2})$ -atomen die het laserprofiel binnendringen, worden door het resonante laserveld geëxciteerd naar een kortlevende toestand van het  $\text{Ne}^{**}\{a\}_k$ -multiplet,



De meeste van deze dubbel geëxciteerde  $\text{Ne}^{**}$ -atomen vallen vrijwel direkt terug (levensduur  $\tau \approx 20$  ns) naar verschillende van de vier onderliggende enkel geëxciteerde  $\text{Ne}^*(2p^5 3s)_i$ -nivo's (die wij hier voor het gemak zullen onderscheiden met een index  $i$ ) onder uitzending van zgn. "direkte" fluorescentiestraling:



Een kleine fractie [ $\sim 10^{-5}$ ]  $\text{Ne}^{**}\{a\}_k$ -atomen zal echter, bij botsingen met de overall aanwezige  $\text{He}(^1S_0)$  dwarsbundel atomen, een inelastische overgang maken naar een andere toestand binnen het  $\{a\}_k$ -multiplet. Dit wordt beschreven door vergelijking (2.1). De zo geproduceerde  $\text{Ne}^{**}$ -atomen vervallen vervolgens weer snel naar enkel aangeslagen nivo's. De hierbij uitgezonden straling zullen we "inelastische" of "botsing geïnduceerde" fluorescentie noemen. Dit alles levert als gecombineerde reactievergelijking



#### 4.2. Experimentele signalen

De produktiesnelheid van "direkte" fotonen in een volume  $d^3V$  bij het verval van  $\text{Ne}^{**}\{a\}_k$ , is

$$d^3 \dot{N}_k = A_k n_k(\vec{r}) d^3 V \quad (4.4)$$

Met  $n_k(\vec{r})$  de dichtheid van  $\{2s\}k$ -deeltjes ter plaatse  $\vec{r}$ , en  $A_k$  de inverse levensduur. De aanmaak van  $Ne^{**}\{2s\}l$ -atomen bij botsingen van  $Ne^{**}$  met dwarsbundeldeeltjes in een volume  $d^3V$  wordt gegeven door

$$d^3 \dot{N}_{l \leftarrow k} = n_k(\vec{r}) n_2(\vec{r}) g(\vec{r}) Q_{lk}(g) d^3V \quad (4.5)$$

met  $n_2(\vec{r})$  de dwarsbundeldichtheid,  $g(\vec{r})$  de relatieve snelheid van hoofd- en dwarsbundeldeeltjes ter plaatse  $\vec{r}$ , en  $Q_{lk}(g)$  de te bepalen inelastische botsingsdoorsnede voor het proces van (2.1).

De geproduceerde  $\{2s\}l$ -atomen vervallen vrijwel allemaal weer direkt, aanleiding gevend tot een produktie van "inelastische" fotonen

$$d^3 \dot{N}_l = d^3 \dot{N}_{l \leftarrow k} = n_k(\vec{r}) n_2(\vec{r}) g(\vec{r}) Q_{lk}(g) d^3V \quad (4.6)$$

De direkte fluorescentiestraling detekteren wij met een detectie-efficiëntie  $\eta_{det,k}(\vec{r})$ , op te splitsen in een golflengte-afhankelijk deel  $\eta_{i \leftarrow k}(\lambda)$  voor elke gedetecteerde fluorescentielijn  $\{2p^5 3s\}i$  en een plaatsafhankelijk deel  $\eta_{\Omega}(\vec{r})$ ,

$$\eta_{det,k} = \sum_i \frac{A_{ik}}{A_k} \eta_{ik}(\lambda) \eta_{\Omega}(\vec{r}) \quad (4.7)$$

met  $A_{ik}/A_k$  de vertakkingsverhoudingen voor de direkte fluorescentielijnen.

Van de inelastische fluorescentie wordt steedsmaar één lijn geselecteerd. De "inelastische" detectie-efficiëntie is dus

$$\eta_{det,l}(\vec{r}) = \frac{A_{jl}}{A_l} \eta_{jl}(\lambda) \eta_{\Omega}(\vec{r}) \quad (4.8)$$

De experimentele direkte en inelastische fluorescentie signalen,  $I_k$  en  $I_l$ , volgen nu uit (4.4) en (4.6) door te vermenigvuldigen met de respectieve detectie-efficiënties en te integreren over het fluorescerende volume  $V$ :

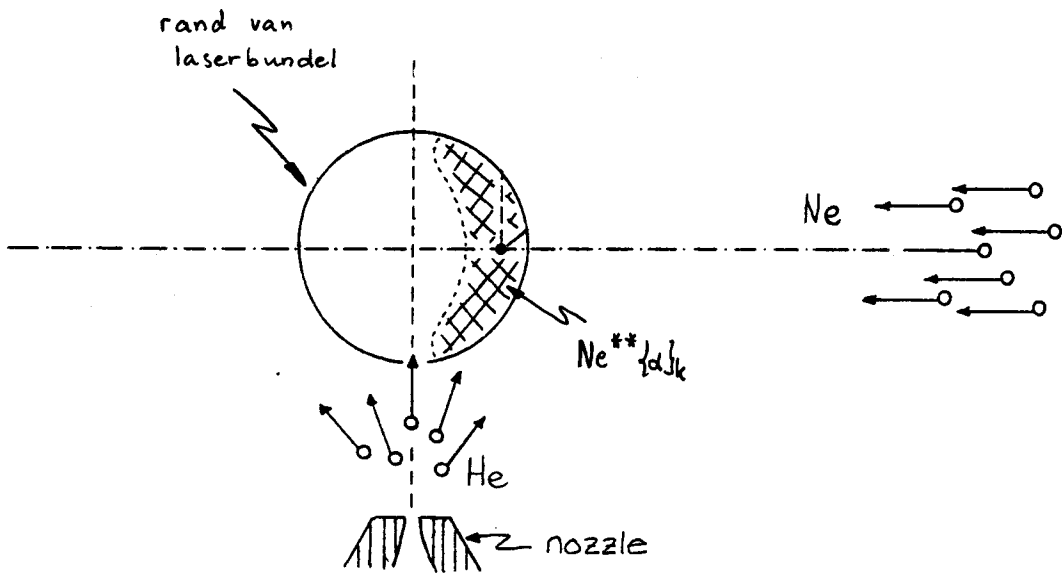
$$I_k = \sum_i \frac{A_{ik}}{A_k} \eta_{ik}(\lambda) A_k \int n_k(\vec{r}) \eta_{\Omega}(\vec{r}) d^3V \quad (4.9a)$$

$$I_l = \frac{A_{jl}}{A_l} \eta_{jl}(\lambda) \int n_k(\vec{r}) n_2(\vec{r}) g(\vec{r}) Q_{lk}(g) \eta_{\Omega}(\vec{r}) d^3V \quad (4.9b)$$



Het integratievolume  $V$  van (4.9) wordt niet begrensd door de dwarsbundeldichtheid  $n_2$ . Omdat de dwarsbundel ongecollimeerd is, bevinden zich in feite overal dwarsbundeldeeltes. Uit berekeningen van Van de Beuchen [BEU85] en Veugelers [VEU86] blijkt dat bij de gebruikte laserintensiteit ( $\approx 75 \text{ W/m}^2$ ) en hoofdbundelsnelheid (1000 m/s) de  $\text{Ne}^*$ -metastabielien al snel na binnentreden van het laserprofiel worden ge%exciteerd.

$\text{Ne}^{**}\{s\}_k$ -atomen bevinden zich dan in hoofdzaak aan de rand van de laserbundel, zoals geschetst in figuur (4.2). Uit dit volume is dan ook de fluorescentiestraling afkomstig.



Figuur 4.2: De verdeling van  $\text{Ne}^{**}$ -atomen is geconcentreerd aan de rand van het laserprofiel.

### 4.3. Absolute botsingsdoorsnedes

Bij zo'n gelocaliseerde  $n_k$  - verdeling zal de relatieve snelheid  $g$  en daarom ook de te bepalen botsingsdoorsnede  $Q_{ek}(g)$ , maar weinig variëren binnen het botsingscentrum. In dat geval kunnen we  $Q_{ek}$  uit de experimentele signalen  $I_e$  en  $I_k$  van vergelijking (4.9) bepalen als:

$$Q_{ek} = \frac{I_e}{I_k} \times \frac{\sum_i \frac{A_{ik}}{A_k} \eta_{ik} A_k \int n_k(\vec{r}) \eta_{\Omega}(\vec{r}) d^3V}{\frac{A_{je}}{A_e} \eta_{je} \int n_k(\vec{r}) n_2(\vec{r}) g(\vec{r}) \eta_{\Omega}(\vec{r}) d^3V} \quad (4.10)$$

Uit (4.10) kunnen we twee belangrijke conclusies trekken:

- i) slechts de verhouding van detectie-efficiënties moet bekend zijn om de absolute waarde van  $Q_{ek}$  te kunnen bepalen.  
Van geen enkele component van het optische detectiesysteem behoeven we de absolute reflectie of transmissie te kennen.
- ii) de metastabielen flux van de hoofdbundel hoeft niet bekend te zijn, daar deze als een voorfactor in  $n_k(\vec{r})$  terecht komt en dus in de deling eruit valt.

Door het elimineren van deze twee absolute maten is het mogelijk om betrouwbare absolute waarden voor de beschouwde inelastische botsingsdoorsnedes te geven.

De verschillende grootheden uit (4.10) worden als volgt bepaald:

- Het  $n_k$  -profiel wordt in een twee-dimensionale benadering numeriek berekend uit de gekoppelde differentiaalvergelijkingen voor de bezettingsgraden van het  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$  - en de  $Ne^*(z_p^s z_s)$ -nivo's in het gaussische stralingsveld van de laserbundel. Rekening wordt gehouden met een plaatsafhankelijke verzwakking van de hoofd- door de dwarsbundel [VEU86].
- De geometrische detectie-afhankelijkheid  $\eta_{\Omega}$  wordt eveneens numeriek berekend met een programma van Ruyten [RUY84] op basis van de transmissie en reflectie-eigenschappen van de afzonderlijke elementen van het in §4.4.2. beschreven optisch systeem.
- De dichtheid van dwarsbundeldeeltes  $n_2(\vec{r})$  volgt uit de theorie van supersone expansies [BEY81]
- De relatieve snelheid  $g$  kan experimenteel worden bepaald.

Met het bovenstaande kunnen de beide integralen in (4.10) worden berekend.

- De calibratie van alle voor  $\eta_{je}$  en  $\eta_{ik}$  belangrijke optische elementen is gedaan door Ruyten [RUY84, RUY84-2]
- De Einstein-coëfficiënten  $A_{ik}, A_{je}, A_k$  en  $A_e$  worden ontleend aan de literatuur [NBS66].

#### 4.4. Opstelling

De Minibundel-I-opstelling wordt gekarakteriseerd door de compacte afmetingen van het eigenlijke bundelgedeelte en het, in vergelijking met andere binnen AOW in gebruik zijnde bundelmachines, bijzondere optische systeem. Het geheel is geschetst in figuur (4.3).

##### 4.4.1. Bundels

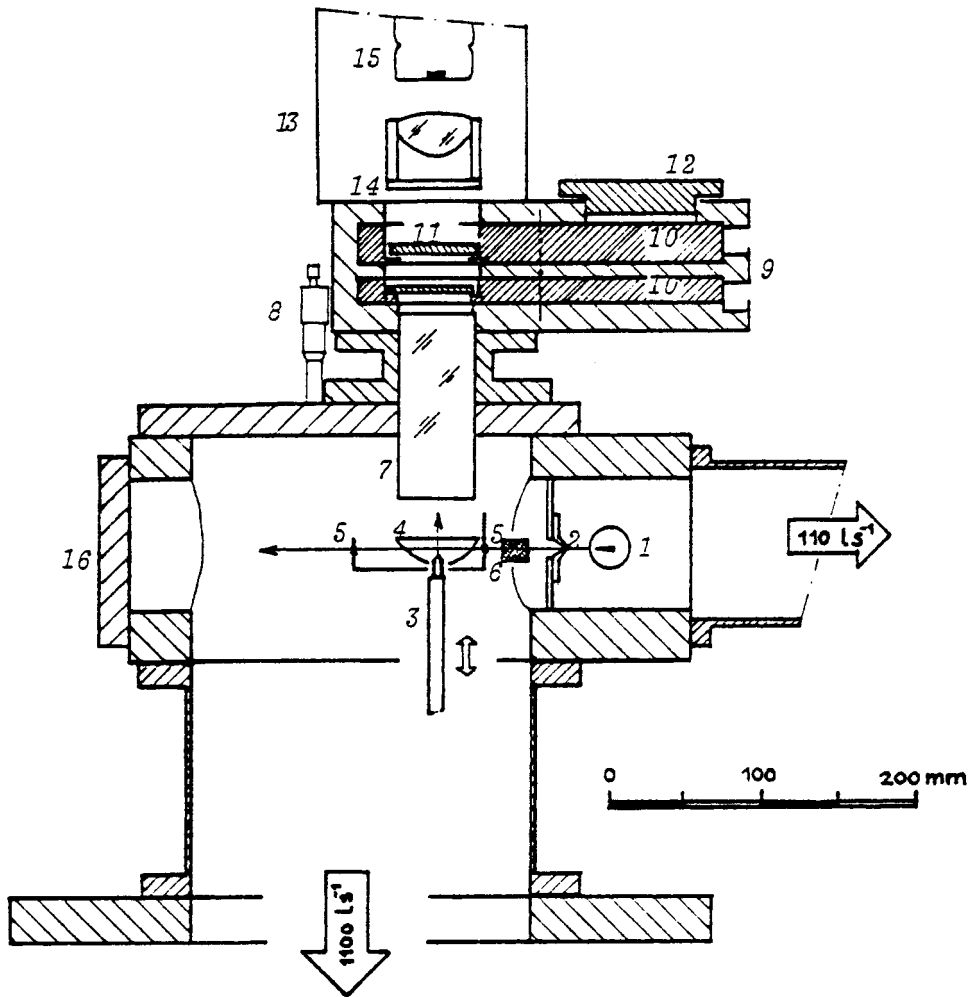
De primaire bundel van Ne-atomen wordt gevormd in een supersone expansie uit de nozzle van een thermische metastabielenbron [DRI83]. Door de nozzle heen wordt een ontlading in stand gehouden waardoor een fractie ( $\sigma$  ( $10^{-5}$ )) van de Ne-atomen in een van de metastabiele  $\text{Ne}^*(2p^5 3s)$ -nivo's terecht komt. De bron is op ca. 90 mm van het strooicentrum geplaatst; direkt na de bron bevindt zich een skimmer met een opening van 0.5 mm diameter. Op 32 mm voor het strooicentrum wordt de bundel nog gecollimeerd door een diafragma van 1 mm diameter.

De snelheidsverdeling van metastabielen in de hoofdbundel kan worden benaderd door een gaussisch profiel met, bij 110 torr reservoirdruk, een meest waarschijnlijke snelheid van 1000 m/s en een snelheidspreiding van 150 m/s [BL086]. De dichtheid van metastabielen in het strooicentrum bedraagt ca.  $10^{14} \text{ m}^{-3}$ .

Zoals reeds gezegd bestaat ook de dwarsbundel uit een (in dit geval ongecollimeerde) expansie uit een nozzle. De eindsnelheid van He-atomen bij 120 torr reservoirdruk bedraagt 1760 m/s, en de dichtheid van dwarsbundeldeeltjes in het strooicentrum  $n_2 \approx 10^{20} \text{ m}^{-3}$ . De afstand tussen nozzle en strooicentrum is instelbaar tussen 0 en 4 mm.

Om de druk in de vacuümruimte waarbinnen het botsingscentrum ligt door de instromende gassen niet op te laten lopen, wordt aan deze ruimte gepompt met een oliediffusiepomp (1200 l/s). In de bronkamer bevindt zich bovendien nog een turbopomp (110 l/s).

De laserbundel is afkomstig uit een Spectra-Physics 580 A Dye-laser. De laserfrequentie is gestabiliseerd binnen 0.5 MHz ( $\Delta\lambda \approx 10^{-7} \text{ nm}$ ) [VER80], gedeeltelijk m.b.v. een computer. Via deze computer kan de lasergolflengte dynamisch worden ingesteld binnen een paar honderd MHz. De laserbundel passeert een aantal optische elementen voordat hij door de opstelling wordt geleid, waarvan de belangrijkste zijn geschetst in figuur (4.4). Het laservermogen wordt gestabiliseerd door een regelkring naar ontwerp van



Figuur 4.3: 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

Vlugter [VLU81], en de bundel wordt gecollimeerd door een diafragma van 1.3 mm diameter. Het laser vermogen in de opstelling bedraagt typisch 0.1 mW.

#### 4.4.2. Optisch systeem

De hoofd-, dwars- en laserbundel snijden elkaar nabij het brandpunt van een  $f = 10.2$  mm parabolische spiegel met een ruimtehoekacceptantie van 40%. De uit het botsingscentrum afkomstige fluorescentiestraling verlaat de spiegel als een evenwijdige bundel en wordt door een lichtpijp geleid, die ook de scheiding tussen het vacuüm in de opstelling en de atmosfeer verzorgt.

Achter de lichtpijp bevinden zich interferentiefilters in een draai-bare filterhouder. Deze filters hebben een transmissie van 40-60% voor de centrale golflengte, een FWHM-breedte van 2 nm en onderdrukken vanaf 5 nm van de centrale golflengte een factor  $10^6$  of beter. De transmissie-curve van een dergelijk filter is gegeven in figuur (4.5). Voor elke te detecteren fluorescentielijn moet een ander filter worden gebruikt; de smalle transmissiepiek is noodzakelijk om de inelastische fluorescentie uit de veel sterkere directe fluorescentie te kunnen "zeven". Bij bepaling van de laatste wordt meestal nog een neutraal filter gebruikt met een verzwakking van 100 à 1000 in een breed golflengtegebied. Straling die de filters is gepasseerd wordt afgebeeld op de kathode van een roodgevoelige EMI 9862K fotomultiplier meteen door koeling verkregen donkerpulsfrequentie van slechts 10 Hz. Pulsen van de multiplier worden versterkt door een amplifier/discriminator [PAR75] en dan geteld m.b.v. een computer-uitleesbare scaler.

De totale, absolute detectie-efficiënties van dit optisch systeem voor de directe en inelastische fluorescentie worden geschat op resp.  $10^{-6}$  en  $10^{-3}$ . Typische telsignalen zijn vermeld in tabel (4.1).

Tabel 4.1: Grootte orde van directe- en inelastische fluorescentie-straling.

fluorescentie-straling	signaal [kHz]	achtergrond [kHz]
direct	30-60	5 - 8
inelastisch	2- 15	14-15

Figuur 4.4:

Optische elementen in de laserbundel.

1: spiegels voor hoogtetranslatie

2: electro-optisch kristal

3: polarisatiefilter

4: beamsplitter

5: fotodiode

} vermogensstabilisatie

6: x- $\psi$ -module: roteer- en transleerbare spiegel  
(stappenmotor bediend)

7: planparallel plaatje (stappenmotor bediend)

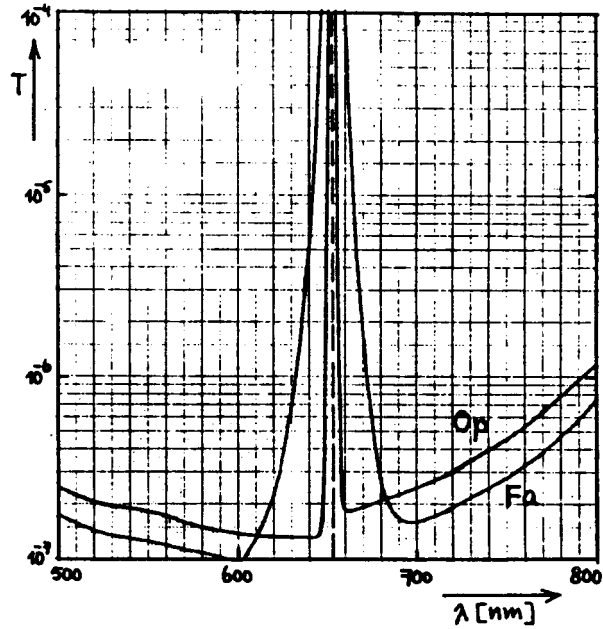
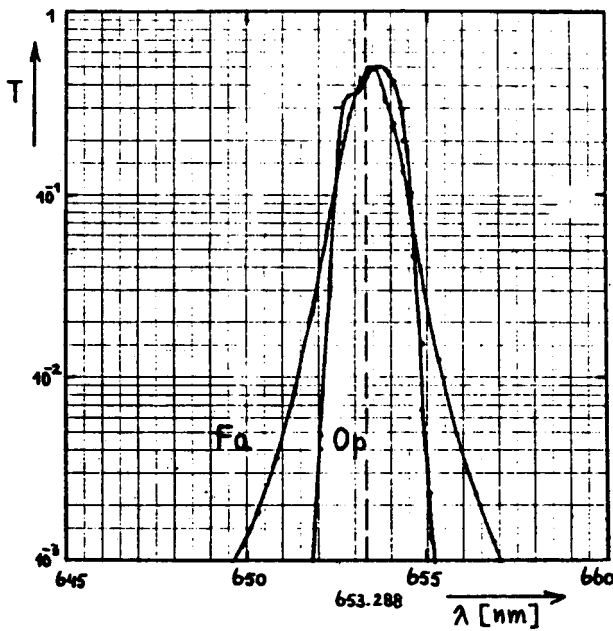
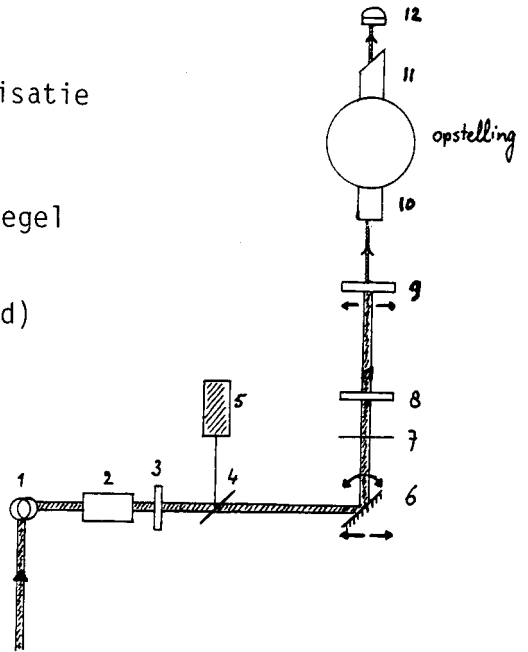
8: Halflambda module (stappenmotor bediend)

9: diafragma

10: vlak venster

11: Brewster-venster

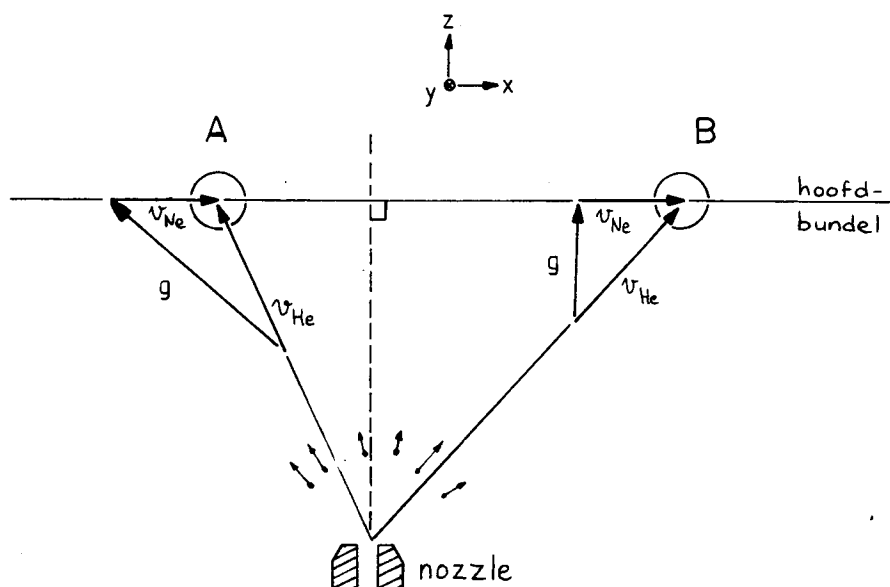
12: vermogensmeter



Figuur 4.5: Transmissiecurven van interferentiefilters (merken Fairlight en Optilas).

#### 4.5. Uitlijning

In §4.3 hebben wij gezien dat de positie van het botsingscentrum wordt bepaald door de plaats waar hoofd- en laserbundel elkaar snijden. In onze opstelling is deze plaats in het bijzonder van belang omdat die ook de relatieve snelheid  $\vec{g}$  vastlegt, wat eenvoudig volgt uit het Newton-diagram van figuur (4.5). In veel experimenten willen we  $\vec{g}$ , en daarmee ook de botsingsenergie  $E_0$ , een bepaalde waarde laten hebben om hetzij met eerdere experimenten, hetzij met gekoppelde kanalen berekeningen te kunnen vergelijken.



Figuur 4.6: De uitlijning van de laserbundel bepaalt de relatieve snelheid. Bij de punten A en B zijn zowel de grootte als ook de richting van  $\vec{g} = \vec{v}_{He} - \vec{v}_{Ne}$  verschillend.

Omdat de lijn van de primaire bundel in de opstelling is gefixeerd door vaste diafragma's moeten wij voor het verkrijgen van een reproduceerbare instelling de laserbundel steeds op dezelfde manier door de opstelling schieten.

Wij hebben getracht dit te verwezenlijken door de uitlijning van de laserbundel geheel te laten geschieden door de experimentcomputer, wat mogelijk is omdat verschillende optische elementen in de lichtweg van de laserbundel zijn voorzien van stappenmotoren.

De opzet is hierbij dat, nadat de laserbundel op het oog door de opstelling is geleid, eerst de hoek tussen hoofd- en laserbundel wordt gevarieerd m.b.v. de x-fi-module (zie figuur (4.4)). Bij een hoek van  $90^\circ$  tussen beide bundels is de direkte fluorescentie maximaal omdat het pompproces  $Ne^* + h\nu_{Laser} \rightarrow Ne^{**}$  door minimale Doppler-verschuivingen dan optimaal functioneert. Vervolgens wordt de overlap tussen hoofd- en

dwarsbundel in de z-richting gevariëerd m.b.v. het planparallele plaatje, en tenslotte de positie van het strooicentrum in de x-richting, opnieuw met de x-fi-module. Bij de laatste variatie maximaliseren wij de inelastische fluorescentie. Bij alle drie de variaties kan de optimale instelling uit de variatie van de gemeten stralingsintensiteit worden afgeleid m.b.v. een kleinste kwadraten methode. Over de reproduceerbaarheid van deze methode zullen wij in hoofdstuk 5 berichten.

#### 4.6. Meetroutine en meetstrategie

Volgens Ruyten [RUY84] moeten voor de bepaling van de verhouding  $I_l/I_k$  8 signalen worden gemeten teneinde alle achtergrondstraling te kunnen elimineren,

$$\frac{I_l}{I_k} = \frac{LA(1) - LA(0)}{KA(1) - KA(0)} - \frac{LU(1) - LU(0)}{KU(1) - KU(0)} \quad (4.11)$$

Het gaat hierbij om bepaling van de direkte ("K") of inelastische ("L") fluorescentiestraling, bij aan-("A") of uit-("U") geschakelde dwarsbundel, bij een laserfrequentie afgestemd op ("1") of juist  $\pm 80$  MHz verstemd van ("0") de excitatie-overgang van (4.1).

Om deze signalen te meten moet in de praktijk om de paar seconden een of andere instelling worden gewijzigd. Onder variatie van een bepaalde grootte (bijvoorbeeld de laserpolarisatierichting  $\hat{E}_p$ ) moet dit gedurende een volledige meting (d.w.z. meerdere uren) worden vastgehouden. Duidelijk is dat verregaande automatisering hier de enige oplossing is. Hieraan is in het verleden dan ook al veel aandacht besteed (zie bijv. [VEU86]), bijvoorbeeld door de filterwisselaar van figuur (4.4) te voorzien van stappenmotoren en het aan/uitschakelen van de dwarsbundel te laten geschieden d.m.v. computergestuurde relais.

Tijdens dit afstudeerwerk is deze automatisering nu zover gevorderd dat de meest gedane metingen, m.n. de bepaling van  $I_l/I_k$  als functie van  $\hat{E}_p$  ("polarisatiemeting"), volledig zelfstandig door de experiment-computer kunnen worden afgehandeld.

Hierbij is tevens de totale meettijd gereduceerd, voor een polarisatiemeting bijv. met een factor  $\approx 2$  (d.w.z.  $1\frac{1}{2}$  uur).

Een probleem is nu nog dat tijdens de metingen bepaalde grootheden of instellingen door drift kunnen veranderen. De invloed hiervan kunnen wij echter minimaliseren door het kiezen van een goede meetstrategie.



Elementair is dan wel dat een totale meting niet te lang mag duren; dit houdt in dat wij  $I_e/I_k$  niet moeten bepalen als functie van meerdere parameters ( $\hat{E}_p$ , botsingsenergie, dwarsbundelgas, eindtoestand  $N_e^{**} \{ \alpha \} e$  ) maar van slechts één parameter. Voor lineaire drift in het meetsysteem wordt verder automatisch gecorrigeerd wanneer wij een meting symmetrisch in de tijd opzetten, d.w.z. dat wij  $I_e/I_k$  bepalen uit een meting die er uit ziet als:

20 sec KA, 20 sec KU, 30 sec LU, 150 sec LA, 30 sec LU, 20 sec KU,  
20 sec KA.

Beide punten hebben in de opzet van de meetprogramma's hun beslag gekregen.

## 5. METINGEN

### 5.1. Polarisatiemetingen

In paragraaf 4.6 hebben wij "polarisatiemeting" gedefiniëerd als het meten van de experimentele signaalverhouding  $I_p/I_k$  als functie van de laserpolarisatierichting  $\hat{E}_p$ . Uit dit soort metingen kunnen wij experimentele, gepolariseerde werkzame doorsnedes  $\sigma_{elk}^{Mk}$  afleiden voor het botsingsproces van (2.1) die direkt vergelijkbaar zijn met berekende gepolariseerde doorsnedes.

Door het meten van dergelijke doorsnedes kunnen wij daarom uitspraken doen over de in de berekening gebruikte  $Ne^{**}$ -He-potentialen. Gepolariseerde doorsnedes zijn daarbij interessanter dan ongepolariseerde, omdat zij meer gedetailleerde informatie bieden. Hierbij denken wij vooral aan het optreden van oriëntatie-effecten.

Om gepolariseerde doorsnedes te kunnen meten, moeten wij  $Ne^{**}$   $\{ \alpha \hat{J}_k$ -deeltjes maken met een bepaalde voorkeursoriëntatie van het electronisch impulsmoment  $\vec{J}_k$ . Dit doen wij door  $Ne^*(^3P_{0,2})$ -metastabielen te exciteren naar  $Ne^{**}$ -toestanden met een lineair gepolariseerde laser. Omdat bij deze excitatie alleen  $\Delta m = 0$ -overgangen zijn toegelaten (quantisatie-as = laserpolarisatie richting), worden de  $Ne^{**}$ -atomen geproduceerd met een welbepaalde oriëntatie van  $\vec{J}_k$  t.o.v. de laserpolarisatie richting. Wanneer wij  $\hat{E}_p$  draaien t.o.v. de asymptotische relatieve snelheid  $\vec{g}_k$  (die de ruimte-vaste z-as vastlegt) van de botsende deeltjes, dan verandert ook de oriëntatie van  $\vec{J}_k$  t.o.v. de asymptotische internucleaire as. De stand van de internucleaire as valt immers asymptotisch samen met de richting  $\hat{g}_k$ . Wanneer er sprake is van een oriëntatie-effect, dan verwachten wij daarom dat met het draaien van  $\hat{E}_p$  ook een verandering van de gemeten, inelastische totale werkzame doorsnede gepaard gaat. Hoe wij dan uit deze gemeten totale doorsnede gepolariseerde doorsnedes kunnen afleiden, zien wij in het vervolg van dit hoofdstuk.

In paragraaf 3.2 hebben wij ons beperkt tot  $Ne^{**}$ -toestanden uit de subset ( $\{ \alpha \hat{J}_k, k = 4,5,6,7 \}$ ). In tabel (5.1) is vermeld voor welke inelastische

overgangen binnen dit subsysteem in dit afstudeerwerk metingen zijn verricht.

Tabel 5.1: Gedane polarisatiemetingen. Vermeld zijn de betrokken inelastische overgangen en de meetdata.

meting nummer	overgang	datum
1	$\{\alpha\}_4 \leftarrow \{\alpha\}_5$	860207
2	$\{\alpha\}_6 \leftarrow \{\alpha\}_5$	860220
3	$\{\alpha\}_7 \leftarrow \{\alpha\}_5$	860207
4	$\{\alpha\}_7 \leftarrow \{\alpha\}_5$	860220
5	$\{\alpha\}_7 \leftarrow \{\alpha\}_6$	860220

## 5.2. Experimentele werkzame doorsnedes

Gemeten werkzame doorsnedes zijn totale werkzame doorsnedes in de zin van (2.20): zij bestaan uit een som over gepolariseerde doorsnedes, gewogen met de bezettingen van de magnetische subnivo's  $|\alpha_k J_k M_k\rangle$  van het  $Ne^{**}$ -atoom. Hierbij is  $M_k$  de projectie van  $\vec{J}_k$  op de ruimte-vaste z-as.

In de praktijk maken wij met de lineair gepolariseerde laser  $Ne^{**}$ -atomen aan in t.o.v. de laserpolarisatierichting  $\hat{E}_p$  zuivere magnetische subtoestanden,  $|\alpha_k J_k M_k\rangle$ , elk met bezettingsgraad  $g_k^{m_k}$ . Wanneer  $\hat{E}_p$  een hoek  $\beta$  maakt met de ruimte-vaste z-as, dan vinden wij door combinatie van (2.20) met (2.33) een verband tussen de experimentele totale werkzame doorsnede  $Q_{\text{elk}}(\beta)$  en de gepolariseerde doorsnedes  $Q_{\text{elk}}^{M_k}$  volgens

$$Q_{\text{elk}}(\beta) = \sum_{m_k} g_k^{m_k} \sum_{M_k} \{d_{m_k M_k}^{(J_k)}(\beta)\}^2 Q_{\text{elk}}^{M_k} \quad (5.1)$$

Bij de polarisatiemetingen van tabel (5.1) doen zich nu twee situaties voor, afhankelijk van de grootte van het impulsmomentquantumgetal  $J_k$ :

- 1)  $J_k = 2$ . Nivo's  $\{\alpha\}_k$  met  $J_k = 2$ , waaronder  $\{\alpha\}_k$ , kunnen alleen worden geëxciteerd vanuit het metastabiele  $\text{Ne}^*(^3P_2)$ -nivo en niet vanuit  $\text{Ne}^*(^3P_0)$ , omdat voor optische overgangen de selectieregel geldt:

$$\Delta J = \pm 1 \text{ of } 0 \quad (5.2)$$

Bij de excitatie wordt het subnivo  $\text{Ne}^{**}(\{\alpha\}_k, m_k = 0)$  niet bezet omdat  $\Delta m = 0$ -overgangen verboden zijn voor  $\Delta J = 0$ . Wij gaan er vanuit dat de boventoestanden  $\text{Ne}^{**}(\{\alpha\}_k, m_k = \pm 1, \pm 2)$  gelijk bezet worden en vinden dus

$$g_k^{m_k} = \frac{1}{4} \quad (m_k \neq 0) \quad (5.3)$$

$$g_k^{m_k=0} = 0$$

In appendix D zijn de draaimatrices  $d_{m_k M_k}^{(J_k)}$  gegeven voor  $J_k = 1$  en  $J_k = 2$ . Berekening van de elementen  $\{d_{m_k M_k}^{(J_k)}(\beta)\}^2$  levert nu op dat de experimentele totale werkzame doorsnede gegeven wordt door

$$\begin{aligned} Q_{ek}(\beta) &= \frac{1}{128} (21 Q_{ek}^0 + 52 Q_{ek}^1 + 55 Q_{ek}^2) + \\ &+ \frac{1}{128} (-12 Q_{ek}^0 + 12 Q_{ek}^2) \cos(2\beta) + \\ &+ \frac{1}{128} (9 Q_{ek}^0 - 12 Q_{ek}^1 + 3 Q_{ek}^2) \cos 4\beta \end{aligned} \quad (5.4)$$

waarbij gebruik is gemaakt van [DRI85]

$$Q_{ek}^{-M_k} = Q_{ek}^{M_k} \quad (5.5)$$

- 2)  $J_k = 1$ . Tot de nivo's waarvoor dit geldt behoort de toestand  $\{\alpha\}_5$ . Dit soort nivo's kunnen wél worden geëxciteerd vanuit de metastabiele toestand  $\text{Ne}^*(^3P_0)$  ( $\Delta J = 1$ ), resulterend in een bezetting van de magnetische subnivo's volgens

$$g_k^{m_k=0} = 1 \quad (5.6)$$

$$g_k^{m_k} = 0 \quad (m_k \neq 0)$$

Berekening van  $\{d_{m_k M_k}^{(J_k)}(\beta)\}^2$  levert nu een totale werkzame doorsnede op gegeven door

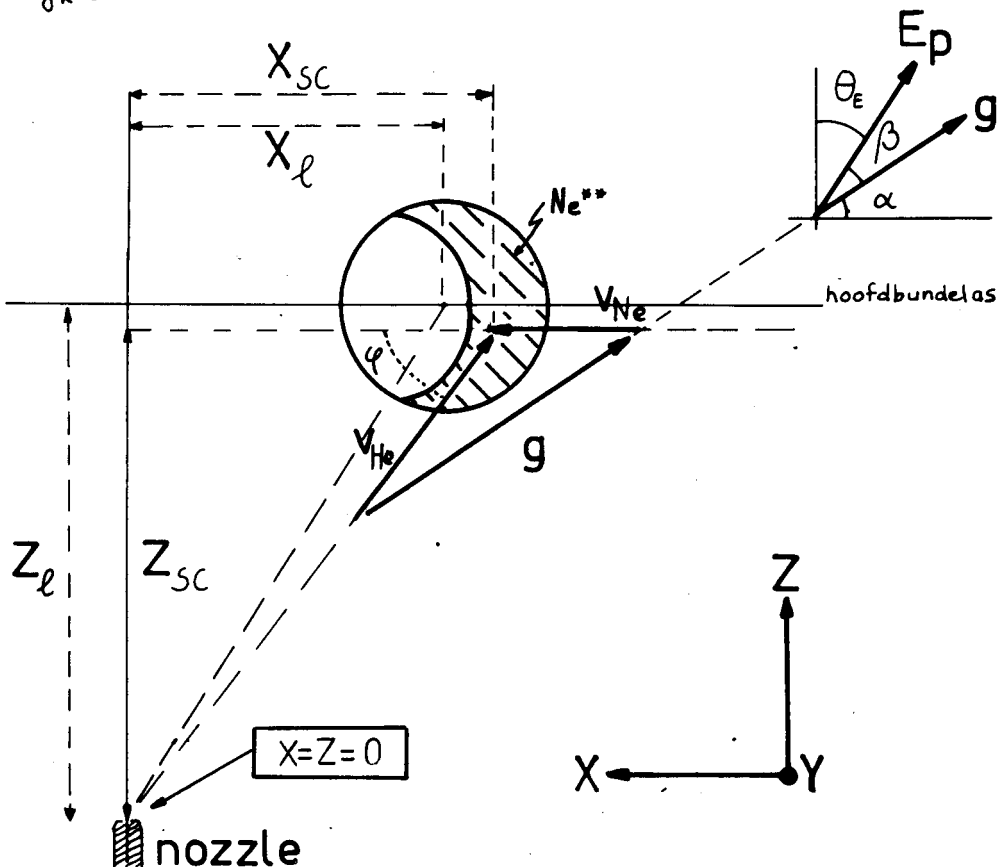
$$Q_{ek} = \frac{1}{2} (Q_{ek}^0 + Q_{ek}^1) + \frac{1}{2} (Q_{ek}^0 - Q_{ek}^1) \cos 2\beta \quad (5.7)$$

Ne<sup>\*\*</sup>-toestanden waarvoor  $J_k = 1$  zouden wij ook kunnen exciteren vanuit Ne<sup>\*</sup>(<sup>3</sup>P<sub>2</sub>), maar dit levert een gelijke bezetting van alle  $m_k$ -subnivo's op. Een dergelijke isotrope toestand zal nooit een oriëntatie-effect te zien geven.

### 5.3. Bepaling van positie en botsingsenergie

De experimentele verhouding van inelastische en directe fluorescentie-straling  $I_\lambda / I_k$  kan met uitdrukking (4.10) worden omgerekend naar een absolute werkzame doorsnede  $\sigma_{elk}$ . De omrekenfactor is afhankelijk van de positie van het botsingscentrum, die ook de relatieve snelheid en dus de botsingsenergie bepaalt. Wij moeten daarom de positie van het botsingscentrum kennen. In deze paragraaf zullen wij zien dat deze positie uit de experimentele signalen zélf kan worden afgeleid.

In figuur (5.1) is een voorstelling van de situatie in het botsingscentrum gegeven. Het getekende XYZ-assenstelsel wordt vastgelegd door de drie bundellijnen (hoofd-, laser- en dwarsbundel) en is daarom aan de experimentator bekend. Het stelsel valt niet samen met het tot nu toe steeds gebruikte ruimte-vaste assenstelsel, waarvan de z-as immers langs  $\vec{g}_k$  gekozen is.



Figuur 5.1: Het botsingscentrum. De symbolen zijn gedefinieerd in de tekst. De positie  $(X_{sc}, Z_{sc})$  valt niet samen met het snijpunt  $(X_l, Z_l)$  van hoofd- en laserbundel. De hoek  $\beta$  tussen relatieve snelheid en laserpolarisatierichting wordt gegeven door  $\beta = \frac{\pi}{2} - \theta_E - \alpha$ .

Het zwaartepunt  $(X_{SC}, Z_{SC})$  van het inelastische fluorescentie uitstralende volume (het punt dus waar "gemiddeld" naar wordt gekeken) wordt bepaald door de verdeling van  $Ne^{**}\{\alpha\}_k$ -atomen, geconcentreerd aan de rand van het laserprofiel, de dichtheid van He-dwarsbundel atomen en de plaatsafhankelijkheid van de optische detectie-efficiëntie. Het punt  $(X_{SC}, Z_{SC})$  valt i.h.a. niet samen met het snijpunt  $(X_L, Z_L)$  van hoofd- en laserbundelas. Omdat wij bij de uitlijning van de laserbundel hebben gezorgd voor een maximale overlap tussen hoofd- en laserbundel, zijn  $Z_{SC}$  en  $Z_L$  echter in eerste orde aan elkaar gelijk. Bij nauwkeuriger beschouwing geven modelberekeningen aan dat tussen  $Z_{SC}$  en  $Z_L$  over een groot  $X_L$ -bereik een vrijwel vast verschil bestaat. Omdat  $Z_L$  door de experimentator wordt ingesteld en dus bekend is, is dan in feite ook  $Z_{SC}$  bekend.

De relatieve snelheid  $\vec{q}_k = \vec{v}_{He} - \vec{v}_{Ne}$  ter plaatse van het zwaartepunt  $(X_{SC}, Z_{SC})$  maakt een hoek  $\alpha$  met de negatieve X-as. Met behulp van de sinusregel kan eenvoudig worden afgeleid dat de hoek  $\varphi$  tussen  $\vec{v}_{He}$  en de negatieve X-as uit  $\alpha$  volgt als

$$\varphi = \alpha + \arcsin\left(\frac{v_{Ne}}{v_{He}} \sin \alpha\right) \quad (5.8)$$

Uit  $\varphi$  en  $Z_{SC}$  volgt dan  $X_{SC}$  via de relatie

$$\tan \varphi = -X_{SC} / Z_{SC} \quad (5.9)$$

Uit  $\varphi$  en  $\alpha$  kan bovendien de relatieve snelheid (en dus de botsingsenergie  $E_{SC}$ ) worden afgeleid. Nogmaals toepassen van de sinusregel geeft namelijk

$$q_k = v_{He} \cdot \sin \varphi / \sin \alpha \quad (5.10)$$

Wanneer wij  $\alpha$  kennen, kunnen dus zowel de X-positie van het strooi-centrum als ook de botsingsenergie worden berekend.

Wij bedenken nu dat de hoek  $\beta$  tussen  $\hat{E}_p$  en  $\vec{q}_k$  samenhangt met  $\alpha$  en de door de experimentator ingestelde (en dus ook bekende) hoek  $\theta_E$  tussen de laserpolarisatierichting en de positieve Z-as volgens

$$\beta = \frac{\pi}{2} - \theta_E - \alpha. \quad (5.11)$$

Omdat wij weten hoe de gemeten werkzame doorsnede varieert met  $\beta$ , n.l. volgens (5.4) of (5.7), kunnen we  $\alpha$  als een fitparameter verkrijgen uit

een kleinste kwadraten aanpassing van (5.4) of (5.7) aan die gemeten werkzame doorsnede. Deze aanpassing levert ons dan tevens de waarden van de gepolariseerde doorsnedes  $\alpha_{\ell k}^0$ ,  $\alpha_{\ell k}^1$  en  $\alpha_{\ell k}^2$  (voor zover van toepassing).

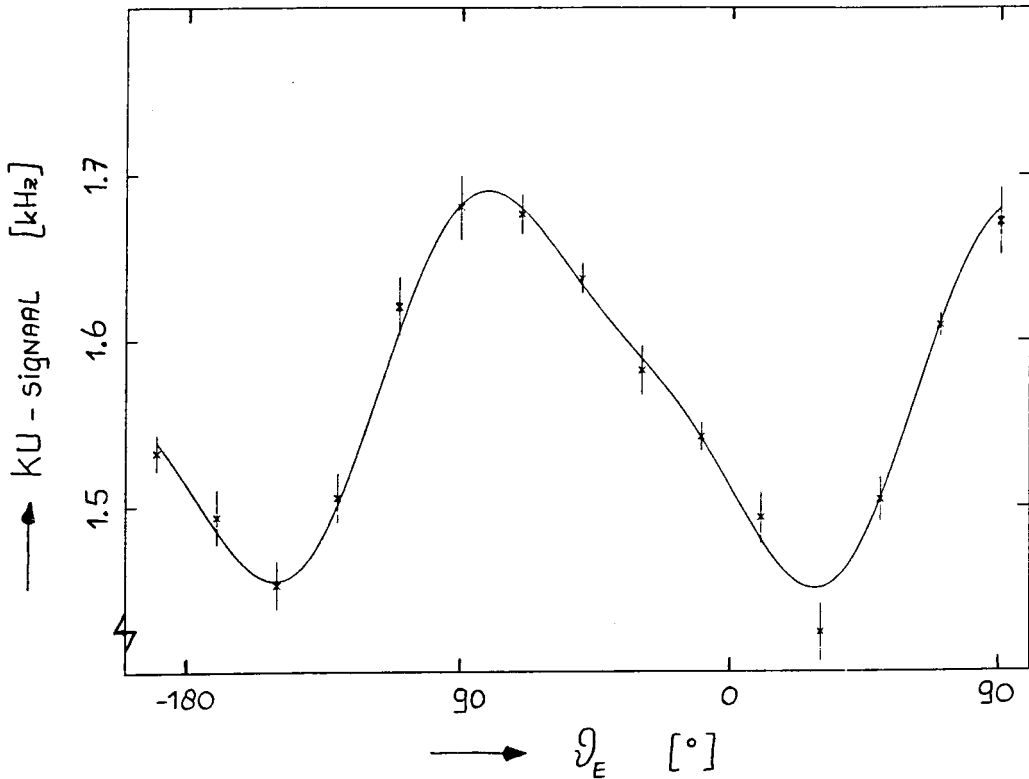
Deze methode van het bepalen van de hoek  $\alpha$  is niet toepasbaar wanneer de gemeten werkzame doorsnede geen oriëntatie effect toont (en de amplituden van de  $\cos(2\beta)$  en  $\cos(4\beta)$ -termen in (5.4) en (5.7) dus gelijk aan nul zijn). In dat geval kan  $\alpha$  dan toch worden bepaald door direkt na deze meting een andere inelastische overgang door te meten die wel een oriëntatie-effect laat zien, onder de aanname dat het botsingscentrum hierbij niet significant van plaats verandert.

#### 5.4. Verwerking van de metingen

De intensiteit van de direkte fluorescentiestraling hangt alleen af van de mate waarin kortlevende  $Ne^{**}$ -deeltjes worden geëxciteerd vanuit de metastabiele nivo's. Dit pompproces is onafhankelijk van de polarisatierichting van de laser. In de praktijk blijkt niettemin de gedetecteerde hoeveelheid direkte fluorescentiestraling  $I_k$  afhankelijk te zijn van de polarisatierichting  $\hat{E}_p$ . Dit effect ontstaat doordat de kortlevende deeltjes worden aangemaakt in een gepolariseerde toestand. Bij het verval van deze toestand is dan ook de fluorescentiestraling gepolariseerd. Detectie van deze straling door een optisch systeem met een ruimtehoek-acceptantie  $< 2\pi$  zal daarom een signaal opleveren waarvan de grootte afhankelijk is van de polarisatietoestand van de geëxciteerde deeltjes, en dus van de polarisatierichting van de laser.

Deze variatie van  $I_k$  met  $\hat{E}_p$  wordt in eerste benadering beschreven door een  $\cos(2\beta)$ -term (zie figuur 5.2), echter uit fase met de  $\cos(2\beta)$ -term in het  $I_\ell$ -signaal, die het gevolg is van de variatie van de werkzame doorsnede met  $\hat{E}_p$ . De verhouding  $I_\ell/I_k$  gedraagt zich dus niet precies volgens (5.4) of (5.7). Bepaling van de positie van het botsingscentrum uit  $I_\ell/I_k(\beta)$  volgens de methode van paragraaf 5.3 levert dan niet de goede waarde op.

Voor de metingen van tabel (5.1) is er daarom voor gekozen de hoek  $\alpha$  te bepalen uit de inelastische fluorescentie  $I_\ell(\beta)$ . Bij de bepaling van werkzame doorsnedes uit  $I_\ell/I_k$  hebben wij  $I_k(\beta)$  vervolgens gemiddeld over  $180^\circ$ . Deze gemiddelde directe fluorescentiestraling zou worden gemeten wanneer zij isotroop werd uitgezonden, en is dus de juiste maat voor het direkte verval.



Figuur 5.2: Variatie van het direkte fluorescentiesignaal (KU-signaal, zie paragraaf 4.5) met de hoek  $\theta_E$  die de polarisatierichting van de laser vastlegt.

Een probleem bij deze methode is echter dat de fluorescentiesignalen nu moeten worden gecorrigeerd voor sprongen in de intensiteit van de metastabielen bron, welke in de praktijk inderdaad op blijken te treden. Dit is alleen mogelijk wanneer zo'n sprong duidelijk in meerdere meetpunten aanwezig is.

Voor de toekomstige metingen moet daarom worden gekozen voor een wat afwijkende meetmethode waarbij de direkte fluorescentie steeds bij dezelfde laboratorium-polarisatierichting wordt bepaald. De verhouding  $I_L/I_K$  is daarmee neutraal voor zowel sprongen in de bronintensiteit als ook voor de polarisatie-afhankelijke detectie-efficiëntie.

Na afloop van een meting moet nu wel het gemeten  $I_K$  signaal worden gerelateerd aan het over  $180^\circ$  gemiddelde. Dit is mogelijk door een polarisatiemeting uit te voeren waarbij alleen het  $I_K$ -signaal wordt bepaald.



### 5.5. Meetresultaten

Voor alle metingen van tabel (5.1) zijn de experimentele totale werkzame doorsnedes  $Q_{\alpha k}$  in de figuren 5.3 als functie van de hoek  $\beta$  tussen relatieve snelheid en laserpolarisatie, omgerekend naar absolute waarden. Tevens is in de figuren de statistische nauwkeurigheid van de meetpunten aangegeven.

In tabel (5.2) is van elke meting aangegeven m.b.v. welke fitfuncties de hoek  $\alpha$  en de gepolariseerde doorsnedes  $Q_{\alpha k}^0$ ,  $Q_{\alpha k}^1$  en evt.  $Q_{\alpha k}^2$  uit de metingen zijn afgeleid. Bovendien is vermeld welke correcties op de experimentele signalen werden uitgevoerd; deze correcties zijn in paragraaf 5.4 genoemd.

In tabel (5.3) zijn de uit  $\alpha$  afgeleide waarden van  $X_{\beta}$ ,  $X_{SC}$ ,  $Z_{SC}$  en  $\beta$  gegeven. Deze werden bepaald m.b.v. het plaatsafhankelijkheidsprogramma van Veugelers [VEU86].

De meting  $\{\alpha\}_4 \leftarrow \{\alpha\}_5$  gaf geen significant oriëntatie-effect te zien, zodat de positie van het botsingscentrum niet uit de meting kan worden afgeleid. Deze positie is daarom gelijk gekozen aan die van de op dezelfde dag uitgevoerde  $\{\alpha\}_7 \leftarrow \{\alpha\}_5$  meting. Bovendien waren van het gebruikte interferentiefilter voor selectie van de inelastische fluorescentie-straling alleen fabrieksgegevens t.a.v. de transmissie bekend.

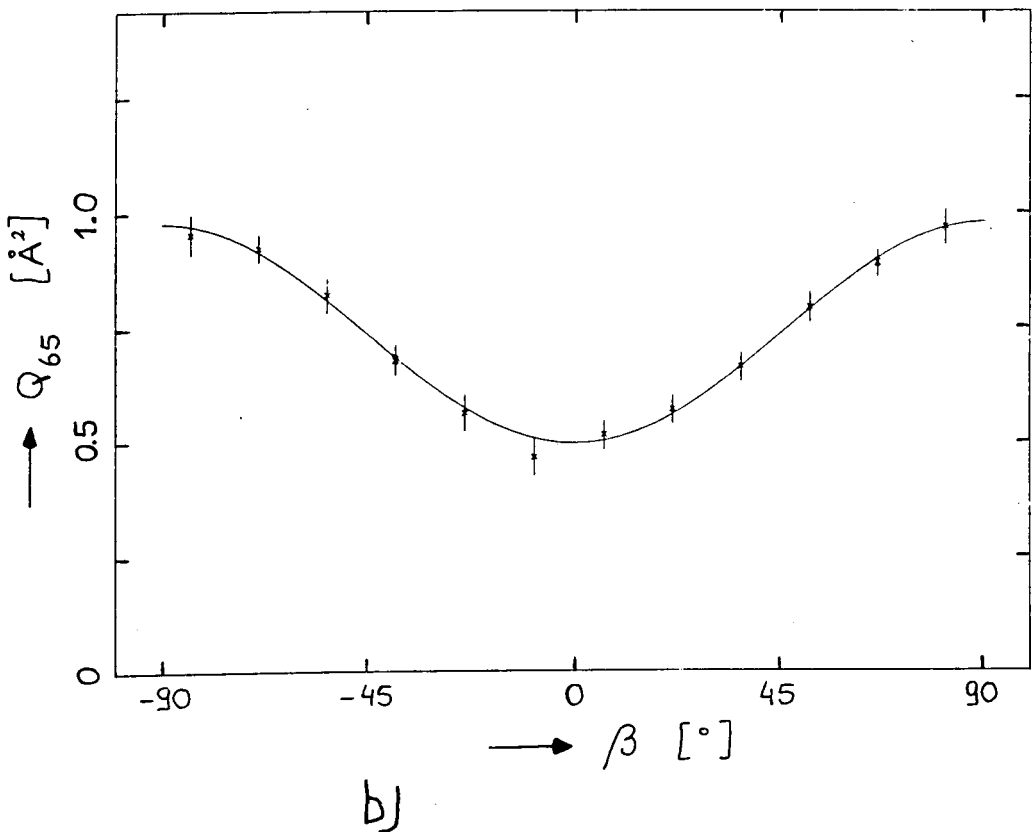
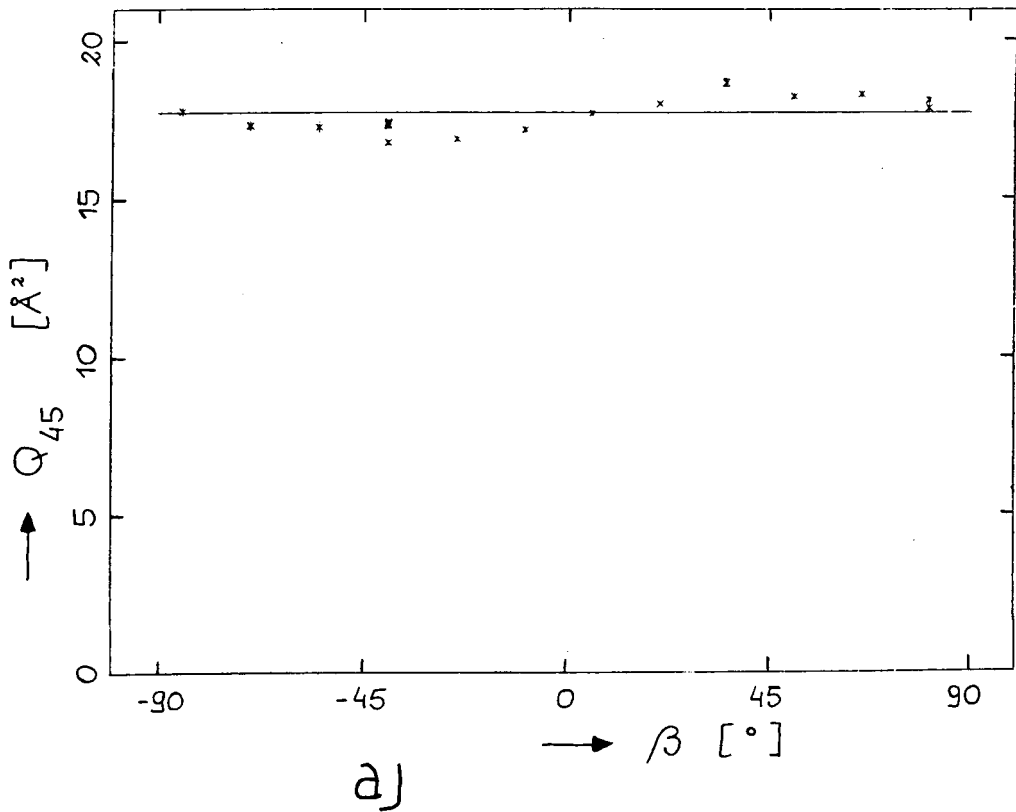
In tabel (5.4) zijn de geldende waarde van de botsingsenergie  $E_{SC}$  en de absolute waarden van  $Q_{\alpha k}^0$ ,  $Q_{\alpha k}^1$  en  $Q_{\alpha k}^2$  samengevat.

Onze metingen laten zien dat er grote verschillen zijn wat betreft de absolute waarde van doorsnedes (vgl.  $Q_{45}$  en  $Q_{65}$ ) en ook wat betreft oriëntatie-effect (vgl.  $Q_{75}^0/Q_{75}^1$  en  $Q_{45}^0/Q_{45}^1$ ). Ook kan zowel  $Q^0$  groter zijn dan  $Q^1$  als andersom (vgl.  $Q_{75}^0/Q_{75}^1$  met  $Q_{65}^0/Q_{65}^1$ ).

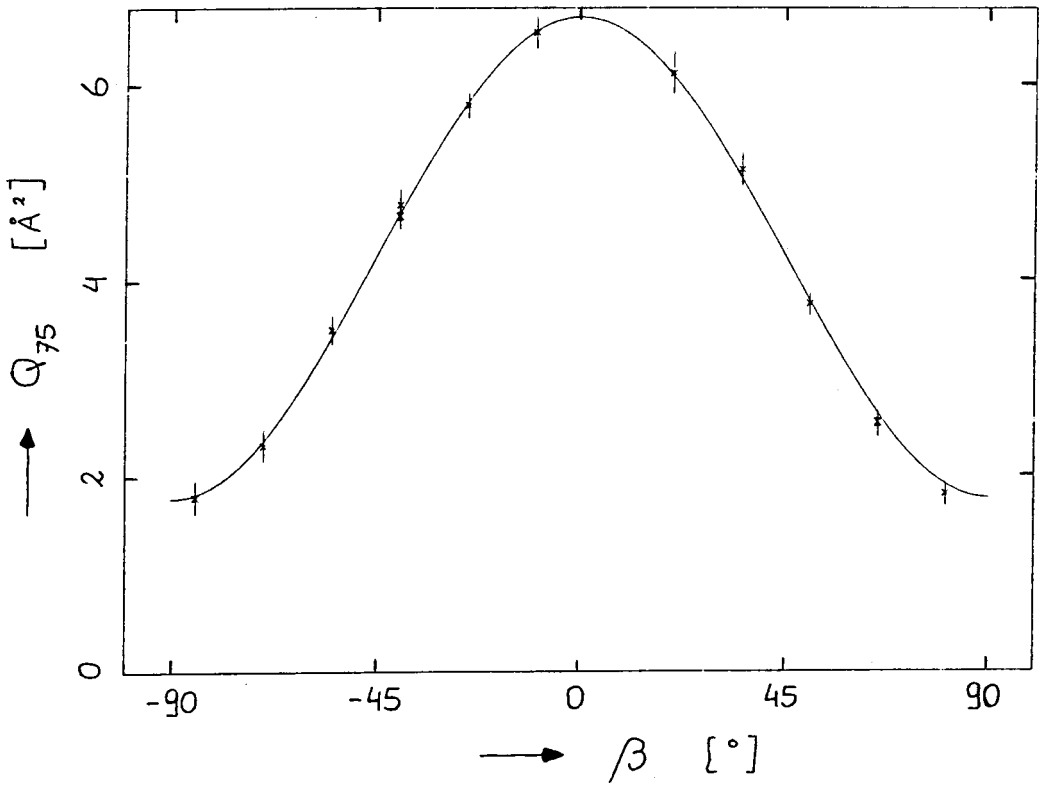
De gemeten gepolariseerde doorsnedes van tabel (5.4) zullen wij in hoofdstuk 6 vergelijken met berekende doorsnedes.

**Tabel 5.2:** Fitfuncties en uitgevoerde correcties voor de metingen van tabel (5.1). Correctie A staat voor middeling van  $I_k(\beta)$  over  $2\pi$ , correctie B voor terugrekening van een sprong in de bronintensiteit.

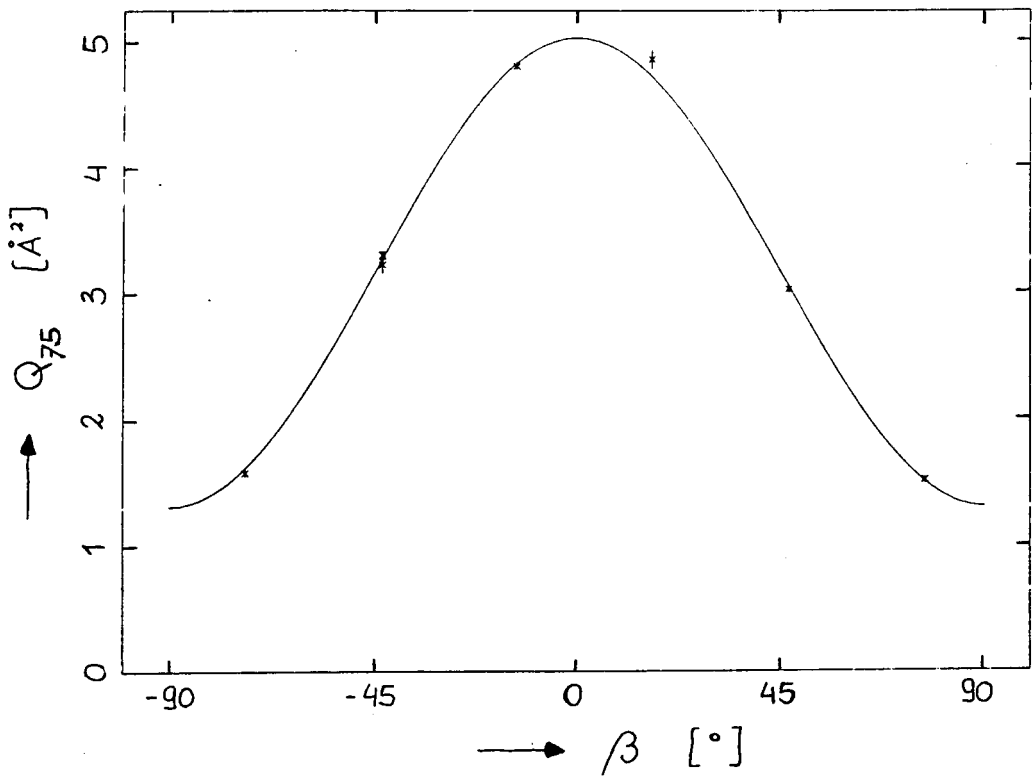
Meting	fitfunctie	correctie
1	(5.4)	-
2	(5.4)	A/B
3	(5.4)	A
4	(5.4)	A
5	(5.7)	A



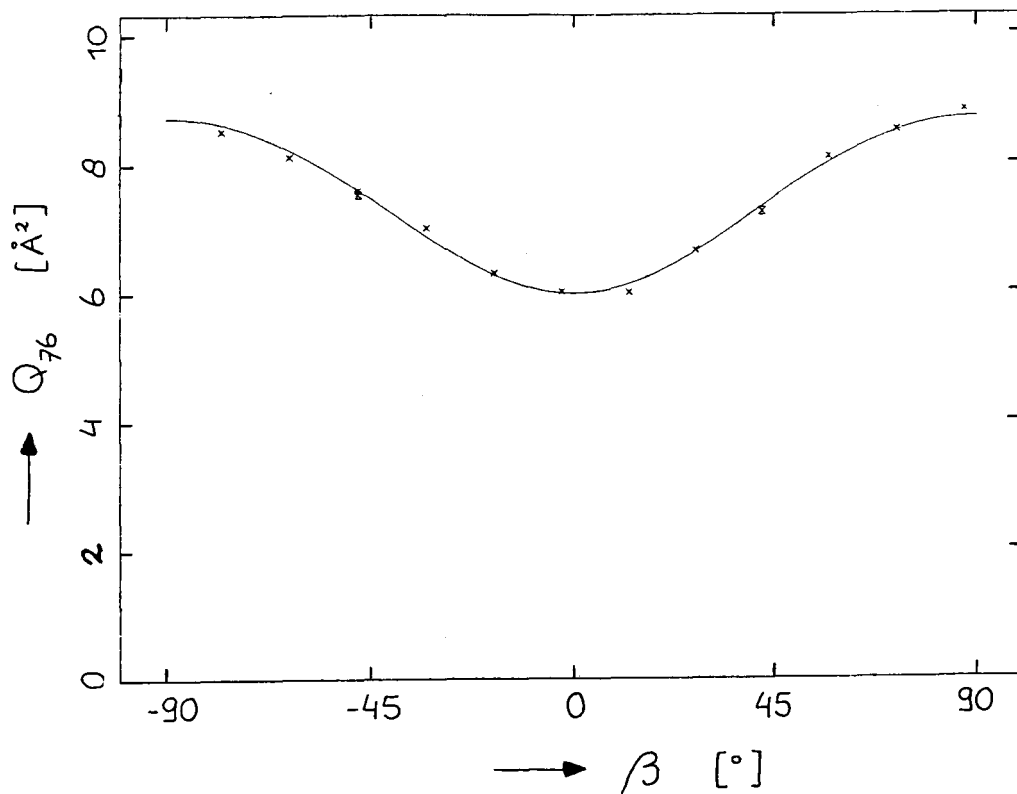
Figuur 5.3: Experimentele werkzame doorsnedes als functie van de hoek  $\beta$  tussen relatieve snelheid en laserpolarisatierichting.  
 fig. a: meting 1 van tabel 5,1,  $Q_{45}(\beta)$   
 fig. b: meting 2,  $Q_{65}(\beta)$ ; fig. c: meting 3,  $Q_{75}(\beta)$ ;  
 fig. d: meting 4,  $Q_{75}(\beta)$ ; fig. e: meting 5,  $Q_{76}(\beta)$ .



c)



d)



e)

Tabel 5.3: Uit de experimentele signalen afgeleide hoek  $\alpha$ , en daaruit berekende waarden van  $Z_{sc}$ ,  $X_{sc}$ ,  $X_l$  en  $g$  (zie figuur (5.1)).

\*: identiek gekozen aan eerdere meting op dezelfde dag.

meting	$g$ [m/s]	$\alpha$ [ $^\circ$ ]	$Z_{sc}$ [mm]	$X_{sc}$ [mm]	$X_l$ [mm]
1	2400	39.7 *	1.76	-1.00	-0.78
2	2400	38.8	1.76	-1.05	-0.84
3	2400	39.7	1.76	-1.00	-0.78
4	2350	43.4	1.76	-0.79	-0.54
5	2270	47.7	1.76	-0.57	-0.35

Tabel 5.4: Botsingsenergie  $E_0$  en gepolariseerde werkzame doorsnedes  $Q_{\text{ek}}^{Mk}$  voor de metingen van tabel (5.1).

meting	overgang	$E_{\text{sc}}$ [meV]	$Q_{\text{ek}}^0$ [A <sup>2</sup> ]	$Q_{\text{ek}}^1$ [A <sup>2</sup> ]	$Q_{\text{ek}}^2$ [A <sup>2</sup> ]
1	$\{ \alpha \}_4 \leftarrow \{ \alpha \}_5$	99	17.7	17.7	-
2	$\{ \alpha \}_6 \leftarrow \{ \alpha \}_5$	101	0.50	0.99	-
3	$\{ \alpha \}_7 \leftarrow \{ \alpha \}_5$	99	6.7	1.8	-
4	$\{ \alpha \}_7 \leftarrow \{ \alpha \}_5$	95	5.0	1.3	-
5	$\{ \alpha \}_7 \leftarrow \{ \alpha \}_6$	89	8.7	6.3	0.23

## 5.6. Discussie

1) De foutenanalyse van het gepresenteerde soort metingen is vanwege de complexiteit nog lang niet volledig. De onnauwkeurigheid in de metingen volgende parameters wordt niet alleen bepaald door de statistische nauwkeurigheid van de meetpunten; van alle grootheden zouden wij moeten weten hoe zij variëren binnen het botsingscentrum en met welk gewicht zij daarbij de gemeten fluorescentiestraling beïnvloeden.

Voor de absolute waarden van de werkzame doorsnedes geldt dat de nauwkeurigheid daarvan bepaald wordt door de precisie van het model waarmee wij de signaalverhouding  $I_l/I_k$  omrekenen naar werkzame doorsnedes. Als grove bovengrens voor de resulterende onnauwkeurigheid wordt voorlopig een waarde van 30% aangehouden.

In de nabije toekomst verwachten wij door middel van metingen en modelberekeningen een volledige analyse te kunnen presenteren [HOE86].

2) De metingen 3 en 4, beide betrekking hebbend op de overgang  $\{ \alpha \}_7 \leftarrow \{ \alpha \}_5$ , laten verschillen in  $Q^0$  en  $Q^1$  zien in de orde van 25% bij een slechts 5% verschillende botsingsenergie.

Wanneer wij echter de experimentele signaalverhoudingen  $I_l/I_k$  voor beide metingen vergelijken, dan zijn deze binnen 5% aan elkaar gelijk. De verschillen in werkzame doorsnedes zijn daarom het gevolg van het verschil in  $X_{\text{sc}}$  dat aanleiding geeft tot een andere omrekenfactor van  $I_l/I_k$  naar absolute werkzame doorsnedes.

Blijkbaar kan uit een van beide metingen  $\chi_{SC}$  niet voldoende nauwkeurig worden bepaald. In verband met het grotere aantal meetpunten bij meting 3 en de ligging van de meetpunten t.o.v. de fitcurve, geven wij de voorkeur aan de uitkomsten van meting 3 boven die van meting 4.

- 3) Meer algemeen volgt uit tabel (5.3) dat de positie van het botsingscentrum niet erg constant is, zelf niet bij twee verschillende metingen op dezelfde dag (vgl. meting 2, 4 en 5). Dit werd al eerder geconstateerd [VEU86]. Blijkbaar hebben wij met de geautomatiseerde uitlijning van de laserbundel, zoals beschreven in paragraaf 4.5, geen significante verbetering gebracht in de nauwkeurigheid waarmee de positie van het botsingscentrum kan worden vastgelegd.

De problemen met het vastleggen van het strooicentrum zullen in de zeer nabije toekomst worden opgelost door gebruik van kwadrant-diodes. Deze zijn verdeeld in vier kwadranten, zodat de positie van de laserspot op een diode kan worden afgeleid uit elektrische verschillingsspanningen tussen die kwadranten. Met twee van dergelijke diodes kan de lijn van de laserbundel op mechanische wijze worden vastgelegd. Een voorlopige schatting is dat de positie van het strooicentrum met deze methode op  $20 \mu\text{m}$  nauwkeurig kan worden vastgelegd.

- 4) Door Driessen [DRI85] zijn met de "Minibundel I"-opstelling eveneens metingen verricht aan het systeem  $\text{Ne}^{**} + \text{He}$ . Voor de overgang  $\{\alpha\}_7 \leftarrow \{\alpha\}_5$  is door hem een vergelijkbare polarisatie meting gedaan. Voor de gepolariseerde werkzame doorsnedes resulteerden de waarden  $Q_{75}^0 = 3.7 \text{ \AA}^2$  en  $Q_{75}^1 = 1.2 \text{ \AA}^2$  bij een botsingsenergie  $E_0 = 104 \text{ meV}$ . Vergelijking met de uitkomsten van de metingen 3 en 4 (tabel 5.3) laat zien dat de resultaten van Driessen 30-45% lager liggen dan die in dit werk.

Ten dele is dit te verklaren door een eenvoudiger model voor het bepalen van de omrekenfactor van de signaalverhouding  $I_L/I_K$  naar absolute botsingsdoorsnedes in het geval van Driessen; hij vond een 10% lagere omrekenfactor. Bovendien corrigeerde hij de hoek  $\beta$  niet voor de variatie van het directe fluorescentiesignaal  $I_K$  met de polarisatierichting van de laser. In de praktijk levert dit een correctie  $\Delta\alpha = 4^\circ$ , resulterend in een correctie op de omrekenfactor van ruim 20%. Bovendien kunnen wij nog aanvoeren dat door steeds verdergaande automatisering ook de nauwkeurigheid van de metingen is opgevoerd.

Bij een hoek  $\beta$  van  $63^\circ$  zijn, ook door Driessen, totale botsingsdoorsnedes voor de overgang  $\{\alpha\}_6 \leftarrow \{\alpha\}_5$  en  $\{\alpha\}_7 \leftarrow \{\alpha\}_6$  bepaald.

Zij zijn gegeven in tabel (5.5), samen met in dit werk bepaalde, eveneens omgerekend naar  $\beta = 63^\circ$ . Wij zien in de tabel dat de overeenstemming tussen deze metingen slecht is. Waarschijnlijk wordt dit veroorzaakt door het feit dat de hoek  $\beta$  door Driessen niet uit de metingen zelf is bepaald, maar een aanname is op grond van metingen de dag daarvoor; en in de praktijk de laseruitlijning van dag tot dag blijkt te verschillen. Wij verbinden er daarom geen nadere consequenties aan.

Tabel 5.5: Vergelijking van totale werkzame doorsnedes bepaald door Driessen [DRI85] met doorsnedes uit dit werk, bij een hoek  $\beta = 63^\circ$ .

overgang	$Q_{ek}$ [DRI85] [A <sup>2</sup> ]	$Q_{ek}$ [dit werk] [A <sup>2</sup> ]
$\{\alpha\}_6 \leftarrow \{\alpha\}_5$	0.4	0.78
$\{\alpha\}_7 \leftarrow \{\alpha\}_6$	2.3	4.5

## 6. QUANTUMMECHANISCH BEREKENDE WERKZAME DOORSNEDES

### 6.1. Beschikbare berekeningen

Met het programma "Neon/Coupledchannels" kunnen volledig quantummechanische strooimatrices worden berekend door numerieke integratie van de gekoppelde kanalen vergelijking (2.5). Dit programma is uitvoerig getest op correctheid door Martens [MAR85]. Uit de S-matrix kunnen werkzame doorsnedes worden geconstrueerd volgens de uitdrukkingen (2.23, 2.25, 2.27).

Tot nu toe zijn vier berekeningen gedaan voor botsingen tussen  $\text{He}(^1S_0)$  en  $\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_k$ ; deze zijn samengebracht in tabel (6.1). De overwegingen ten aanzien van stapgrootte, startwaarden etc. voor de numerieke berekening zijn reeds vermeld door Driessen [DRI85].

Bij de berekeningen I en IV van tabel (6.1) is alleen gebruik gemaakt van de potentialen van Hennecart [HEN82]. Omdat voor internucleaire afstanden  $R < 4.5a_0$  in dit geval de potentiaal informatie ontbreekt, veronderstellen wij de aanwezigheid van een harde wand bij  $R = 4.5a_0$ .

Bij de berekeningen II en III hebben wij deze potentialen naar R-waarden  $R < 4.5a_0$  uitgebreid met de core-potentialen van Haberland en met de semi-empirische electronpotentialen  $V_{\pi}^e$  en  $V_{\sigma}^e$  van paragraaf 2.5. In berekening II is  $V_{\sigma}^e$ -potentiaal A, in berekening III  $V_{\sigma}^e$ -potentiaal B gebruikt (c.f. tabel 2.2).

Het gekoppelde kanalenprogramma berekent de S-matrix bij een gegeven totale energie. Dit houdt in dat de kinetische energie van het botsende systeem voor elke begintoestand  $\text{Ne}^{**}\{\alpha\}_k$  anders is. De botsingsenergieën voor begintoestanden  $\{\alpha\}_4$ ,  $\{\alpha\}_5$ ,  $\{\alpha\}_6$  en  $\{\alpha\}_7$  zijn voor alle vier de berekeningen vermeld in tabel (6.2). In de berekeningen I, II en III zijn zij vrijwel identiek; wij kunnen daarom in paragraaf 6.2 de uit deze berekeningen volgende inelastische werkzame doorsnedes onderling vergelijken om te zien welk effect de binnengebied ( $R < 4.5a_0$ )-potentialen hebben. Ook vergelijken wij experimentele en berekende werkzame doorsnedes (paragraaf 6.3). Het gedrag van gepolariseerde doorsnedes  $Q_{\ell k}^{Mk}$  als functie van P wordt in paragraaf 6.4 onderzocht; appendix C tenslotte bevat een additioneel resultaat t.a.v. (botsings-)energie-afhankelijkheid.

In dit hoofdstuk zullen wij meerdere malen de de Broglie-golflengte



$\lambda$  gebruiken. Voor het systeem  $Ne^{**}\{l\}k + He$  hangt deze met de botsingsenergie  $E_0$  samen via de relatie

$$\lambda = \{ 2.25 [a_0^2 \text{ meV}] E_0^{-1} \}^{1/2} \quad (6.1)$$

Tabel 6.1: Beschikbare gekoppelde kanalenberekeningen voor het systeem He- $Ne^{**}$ .

Berekening	datum	potentiaaluitbreiding voor $R < 4.5 a_0$	$V_0^e$ -potentiaal (c.f. tabel 2.2)	P-waarden
I	850524	neen	-	$0 \leq P \leq 120$
II	850717	ja	A	$0 \leq P \leq 80$
III	850719	ja	B	$0 \leq P \leq 90$
IV	860320	neen	-	$0 \leq P \leq 80$

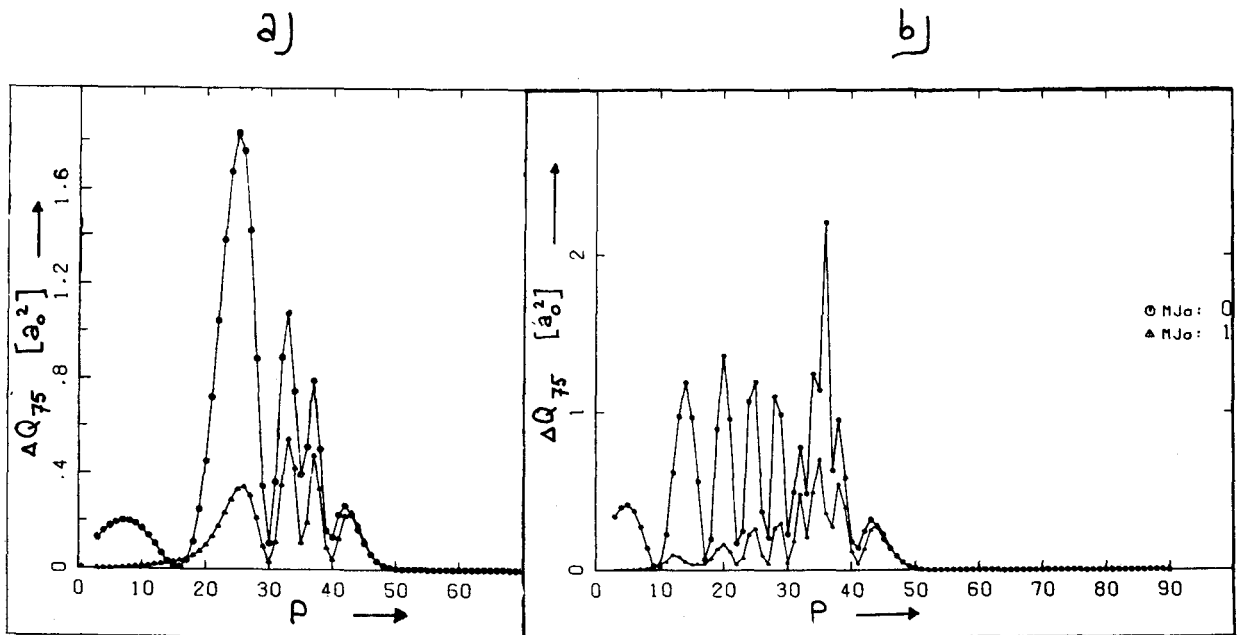
Tabel 6.2: Botsingsenergie  $E_0$  bij begintoestand  $Ne^{**}\{l\}k$ ,  $\{l\}35$ ,  $\{l\}36$ , en  $\{l\}37$  voor de berekeningen van tabel (6.1).

begintoestand	$E_0$ [meV]			
	berekening I	berekening II	berekening III	berekening IV
$\{l\}34$	84	89	89	32
$\{l\}35$	95	100	100	43
$\{l\}36$	152	157	157	100
$\{l\}37$	176	181	181	124

## 6.2. Binnengebiedpotentialen

Het effect van de binnengebiedpotentialen zullen wij onderzoeken door vergelijking van gepolariseerde doorsnedes  $Q_{lk}^{nl}$  volgend uit de berekening I, II en III (welke alleen verschillen in de gebruikte potentialen).

In figuur (6.1) vergelijken wij als typisch voorbeeld het gedrag van  $Q_{75}$  als functie van P voor berekening I en III. Algemeen geldt dat de doorsnedes veel snellere oscillaties vertonen als functie van P voor de berekeningen II en III dan voor berekening I. Dit kunnen



Figuur 6.1: Bijdrage per P-waarde aan de gepolariseerde doorsnedes  $Q_{75}$  van berekening I (fig.a) en berekening III (fig.b). De rechterfiguur toont snellere oscillaties omdat wordt doorgedrongen in het binnengebied.

wij begrijpen wanneer wij terugdenken aan paragraaf 3.3, waarin werd gesteld dat er langs een deeltjesbaan twee punten zijn waar een inelastische overgang kan optreden (vergelijk figuur (3.2)). Daarbij moeten wij rekening houden met het faseverschil dat optreedt tussen deeltjes die bij deze punten een overgang hebben gemaakt, en dat wordt opgebouwd op het traject tussen de twee punten. Over de potentiaalcurven  $\{\alpha\}_6$  en  $\{\alpha\}_7$  is het weglengteverschil kleiner wanneer bij  $R = 4.5 a_0$  (zoals in berekening I) een harde wand is opgesteld, omdat wij dan niet in het binnengebied kunnen doordringen. Hierdoor wordt ook het aantal oscillaties beperkt. Deze redenering geeft ook aan dat in de (hier niet getoonde) inelastische doorsnede voor  $\{\alpha\}_4 \leftarrow \{\alpha\}_5$  minder geprononceerde extra oscillaties optreden; in figuur (3.8) zien wij dat de omkeerpunten op de adiabatische  $\{\alpha\}_4$  en  $\{\alpha\}_5$  curven dan ook boven de  $6 a_0$  liggen.

In paragraaf 3.4 werd reeds vermeld dat het gebied  $R < 4.5 a_0$  alleen bereikt wordt voor P-waarden  $P < 40$ .

In tabel (6.3a) zijn daarom de bijdragen aan de gepolariseerde doorsnedes opgesplitst in twee gedeelten, te weten  $0 < P \leq 35$ , en  $36 < P \leq 80$ . De laatste kolommen vermelden de totale doorsnedes. In deze tabel geven wij alleen de doorsnedes waarvoor wij ook over experimentele gegevens beschikken. In tabel (6.3b) geven wij de procentuele verschillen tussen de uitkomsten van berekening I en II, resp. I en III, opgesplitst naar dezelfde P-gebieden.

Tabel 6.3.a: Uit berekening I, II en III volgende gepolariseerde werkzame doorsnedes, opgesplitst naar P-gebieden  $0 \leq P \leq 35$  en  $P > 35$ . de laatste kolommen geven de over alle P-waarden gesommeerde doorsnedes.

		$Q_{ek}^{M_k} [A^2]$								
$\{\alpha\}_j \leftarrow \{\alpha\}_k$ overgang	$M_k$	p = 0 .. 35			p = 36 .. 80			p = 0 .. 80		
		I	II	III	I	II	III	I	II	III
4 $\leftrightarrow$ 5	0	2.59	2.46	1.83	11.45	11.97	13.64	14.04	14.43	15.47
	1	2.49	2.49	3.44	10.65	11.20	12.10	13.65	13.69	15.54
6 $\leftarrow$ 5	0	0.1636	0.4290	0.4013	0.3304	0.2327	0.2660	0.4945	0.6617	0.6673
	1	0.6634	0.7258	0.6805	0.1736	0.2000	0.2296	0.8365	0.9258	0.9101
7 $\leftarrow$ 5	0	4.861	5.962	5.200	0.913	1.151	2.008	5.774	7.113	7.208
	1	1.179	1.167	1.034	0.616	0.746	1.017	1.795	1.913	2.051
7 $\leftarrow$ 6	0	1.298	0.937	0.896	7.141	7.676	7.897	8.440	8.613	8.793
	1	2.122	2.314	2.215	4.230	4.303	4.929	6.357	6.617	7.144
	2	0.719	0.384	0.431	4.357	4.657	4.699	5.077	5.041	5.130

Tabel 6.3.b: Procentuele verschillen tussen de werkzame doorsnedes uit Berekening I, II en III.

(vermeld in tabel 6.3.a). De verschillen zijn opgesplitst naar P-waarden  $0 \leq P \leq 35$  en  $P > 35$ . De laatste kolommen vermelden de procentuele verschillen tussen de over alle P-waarden gesommeerde doorsnedes.

overgang $\{a\}_k \leftarrow \{a\}_k$	$M_k$	procentueel verschil $p = 0 \dots 35$		procentueel verschil $p = 36 \dots 80$		procentueel verschil $p = 0 \dots 80$	
		I-II	I-III	I-II	I-III	I-II	I-III
4 $\leftarrow$ 5	0	-5	-29	5	19	3	10
	1	-17	14	5	14	2	14
6 $\leftarrow$ 5	0	160	145	-30	-19	34	35
	1	9	3	15	32	11	9
7 $\leftarrow$ 5	0	23	7	26	120	23	25
	1	-1	-12	21	65	7	14
7 $\leftarrow$ 6	0	-28	-31	7	11	2	4
	1	9	4	2	17	4	12
	2	-46	-40	7	8	1	1

Wij zien in tabel (6.3.b) dat er toch niet alleen verschillen tussen de berekeningen I, II en III bestaan voor  $P < 35$ , maar óók voor  $P > 35$ . Dit heeft in de meeste gevallen een compenserend karakter, waardoor over alle P-waarden gesommeerde doorsnedes vaak nauwelijks significante verschillen te zien geven. Door het toevoegen van de binnengebied-potentialen verschuiven de bijdragen aan een doorsnede blijkbaar alleen iets naar het binnen- of buitengebied, zonder echt wezenlijk te veranderen.

Uit het bovenstaande trekken wij de conclusie dat voor een goede beschrijving van de tot nu toe verkregen experimentele resultaten het gebruik van de binnengebied-potentialen zeker niet essentiëel is: de uitkomsten van de berekeningen I, II en III vertonen i.h.a. een verschil dat niet of nauwelijks boven de experimentele nauwkeurigheid uitkomt.

De in dit verslag besproken experimentele resultaten zullen wij dan ook alleen vergelijken met de berekeningen I en IV, waarin alle essentiële potentiaal-informatie blijkbaar al is gebruikt.

Deze conclusie hoeft niet waar te zijn voor overgangen tussen andere dan in dit verslag besproken toestanden, en evenmin voor hogere botsings-energieën. Het is denkbaar dat dan wel belangrijke bijdragen aan de gepolariseerde doorsnedes in het gebied van R-waarden  $R < 4.5a_0$  bestaan. Wij hebben tot nu toe alleen nog geen goede "probe" voor de binnengebied-potentialen gevonden.

### 6.3. Experimentele en berekende werkzame doorsnedes

In tabel (6.4) zijn de in paragraaf 5.5 gevonden experimentele, enkelgepolariseerde doorsnedes  $Q_{lk, exp}^{Mk}$  vermeld samen met berekende doorsnedes  $Q_{lk, th}^{Mk}$ , volgend uit de berekeningen I en IV.

Wij zien uit de tabel dat er een vrij goede overeenstemming is tussen beide, uitgezonderd voor  $Q_{76}^2$ . De berekende doorsnedes laten het juiste oriëntatie-effect zien en ook stemt de onderlinge verhouding van de doorsnedes voor verschillende overgangen vrijwel volledig overeen. Niet alleen grote, maar ook kleine doorsnedes worden goed weergegeven.

Van  $Q_{76}^2$  is de theoretische waarde echter een orde groter dan de experimentele. Terugverwijzend naar het experiment is dit misschien het gevolg van de aanwezigheid van een magneetveld B in het strooicentrum. Bij de laserexcitatie werd van  $Ne^*(^3P_2)$  de subtoestand  $m^* = 0$  niet leeggepompt. Wanneer deze toestand echter gaat precederen om een magneetveldrichting B

Tabel 6.4: Experimentele en theoretische gepolariseerde doorsnedes,  $Q_{lk,exp}^{M_k}$  resp.  $Q_{lk,th}^{M_k}$ . Aangegeven is uit welke berekeningen de theoretische waarden volgen. Tevens zijn de verschillen aangegeven in % van  $Q_{lk,th}^{M_k}$ .

overgang $\{ \alpha \}_l \leftarrow \{ \alpha \}_k$	$M_k$	$Q_{lk,exp}$ [Å <sup>2</sup> ]	berekening	$Q_{lk,th}$ [Å <sup>2</sup> ]	verschil [%]
$\{ \alpha \}_4 \leftarrow \{ \alpha \}_5$	0	17.7	I	14.0	-26
	1	17.7		13.7	-30
$\{ \alpha \}_6 \leftarrow \{ \alpha \}_5$	0	0.50	I	0.50	-1
	1	0.99		0.84	-18
$\{ \alpha \}_7 \leftarrow \{ \alpha \}_5$ **	0	5.0	I	5.8	13
	1	1.3		1.8	38
$\{ \alpha \}_7 \leftarrow \{ \alpha \}_5$ *	0	6.7	I	5.8	-16
	1	1.8		1.8	1
$\{ \alpha \}_7 \leftarrow \{ \alpha \}_6$	0	8.7	IV	8.4	-3
	1	6.3		6.4	2
	2	0.22		5.1	95

\* meting 3 van tabel (5.1)

\*\* meting 4 van tabel (5.1)

die niet samenvalt met de laserpolarisatierichting  $\hat{E}_p$ , dan is  $m^*$  t.o.v.  $\hat{E}_p$  geen behouden grootheid meer. Het gevolg hiervan is dat deze toestand door de precessie alsnog kan worden gepompt, wat de bezettingen van de boventoestanden  $Ne^{**}(\{ \alpha \}_6, m_6 = \pm 1, \pm 2)$  verhoogt. Bij een magneetveld van de orde grootte van het aardmagneetveld, en met een component  $B_{//}$  in het vlak waarin wij tijdens een meting de laserpolarisatierichting draaien, kan deze verhoging **per nivo** afhankelijk zijn van de hoek tussen  $B_{//}$  en  $\hat{E}_p$  [SEN86]. Dit heeft dan weer invloed op het verloop van de gemeten werkzame doorsnede als functie van  $\hat{E}_p$ , zodat dit een mogelijke foutenbron is geweest.

Als tweede mogelijkheid kan de veronderstelling dat bij excitatie van  $Ne^*(^3P_2)$  m.b.v. een laser boventoestanden  $Ne^{**}(\{ \alpha \}_k, m_k = \pm 1, \pm 2)$  isotroop bezet worden, onjuist zijn. In dat geval is er een ander verband tussen de experimentele, totale werkzame doorsnede en gepolariseerde doorsnedes dan wij in paragraaf 5.2 (en dus ook bij het verwerken van de meetdata) hebben aangenomen.

Bij beide mogelijkheden wordt echter niet duidelijk waarom er wel een goede overeenstemming is tussen de experimentele en berekende doorsnedes  $Q_{76}^{M_6}$  voor  $M_6 = 0$  en  $M_6 = 1$ , maar niet voor  $M_6 = 2$ . Beide foutenbronnen dienen dan ook in de toekomst te worden geëlimineerd. De excitatie van  $Ne^*(^3P_2)$  naar  $Ne^{**}$ -toestanden moet nauwkeuriger worden beschreven dan tot nu toe, rekening houdend met verschillende pompwaarschijnlijkheden en vertakkingsverhoudingen voor boven- en ondernivo's. Bovendien moet de invloed van het aardmagneetveld worden geëlimineerd door ófwel dit te compenseren, ófwel gebruik te maken van de Zeeman-splitsing van magnetische subnivo's in een sterk magneetveld. In het laatste geval kunnen wij met de laser selectief één van de overgangen  $Ne^*(^3P_2, m^*) \rightarrow Ne^{**}(\{\alpha\}_k, m=m^*)$  aanslaan.

De uitkomsten van de gekoppelde kanalenberekeningen geven, zoals gezegd, in vergelijking met onze metingen zowel de juiste grootte als ook het juiste oriëntatie-effect aan van de doorsnedes.

Er is daarom geen reden eraan te twifelen dat de potentialen van Hennecart voor de in de metingen betrokken overgangen de wezenlijke informatie bevatten. Uit berekende gepolariseerde doorsnedes kunnen wij dan conclusies trekken omtrent welke factoren de grootte en het oriëntatie-effect van werkzame doorsnedes bepalen.

## 6.4. Gedrag van gepolariseerde werkzame doorsnedes

### 6.4.1. Elastische doorsnedes

In figuur (6.2a) is uitgezet de bijdrage per P-waarde aan de elastische gepolariseerde doorsnede  $Q_{44}^{M_4}$  als typisch voorbeeld van het gedrag van de elastische doorsnedes voor de toestanden  $\{\alpha\}_4$ ,  $\{\alpha\}_5$  en  $\{\alpha\}_6$ . In figuur (6.2b) is de elastische doorsnede  $Q_{77}^{M_7}$  uitgezet tegen P.

We zien in (6.2a) dat de elastische doorsnede vrijwel volledig het gedrag

$$\langle \Delta Q_{44}^{M_4} \rangle \sim 4\pi \tilde{\lambda}^2 (P + \frac{1}{2})$$

vertoont, in paragraaf 3.3 aangeduid als de elastische limiet (3.13):  $Ne^{**}\{\alpha\}_4 + He$ -botsingen zijn dus in hoofdzaak elastisch. Een sterke afwijking van het elastische gedrag vertoont  $Q_{77}^{M_7}$  voor P-waarden  $P < 35$ . Er geldt vrijwel

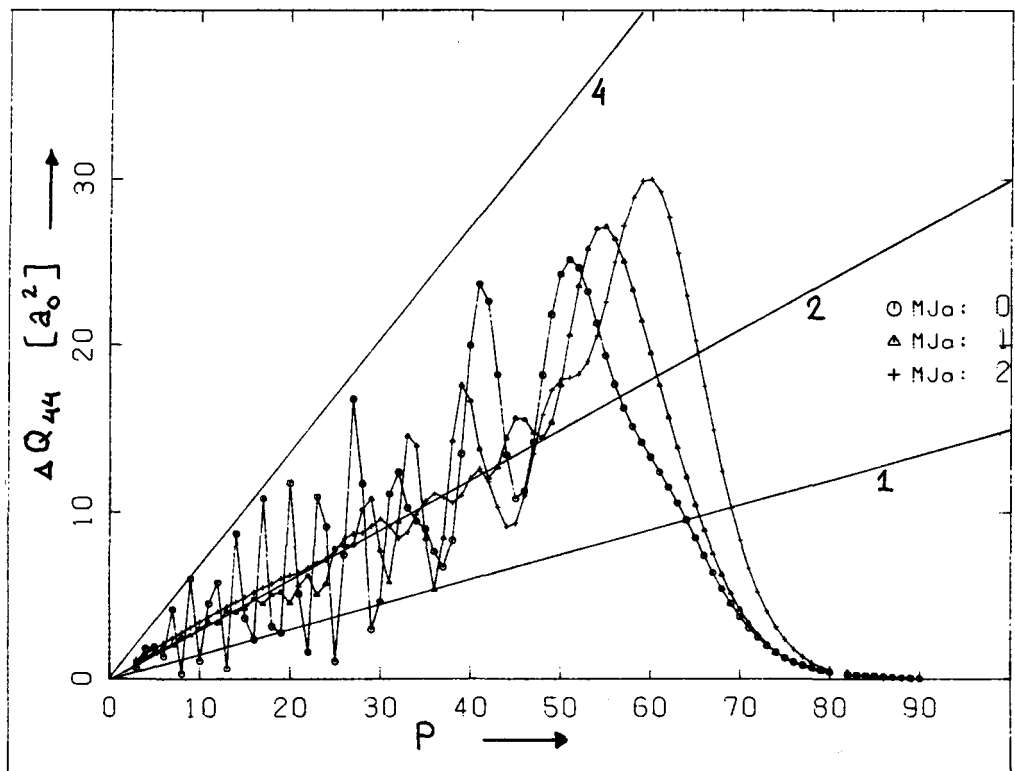
$$\langle \Delta Q_{77}^{M_7} \rangle \sim 2\pi \tilde{\lambda}^2 (P + \frac{1}{2})$$

Dit is juist de inelastische limiet. Verstrooiing van  $Ne^{**}\{\alpha\}_7$  is dus voor kleine P-waarden volledig inelastisch. Inderdaad blijkt uit verdere berekeningen (zie tabel 6.5) dat de doorsnedes voor de inelastische overgangen vanuit  $\{\alpha\}_7$  vrijwel allemaal grote waarden ( $O(3-14 \text{ \AA}^2)$ ) hebben. De toestand  $\{\alpha\}_7$  is dus, in het bijzonder voor P-waarden  $P < 35$ , sterk gekoppeld aan alle nabijgelegen nivo's.

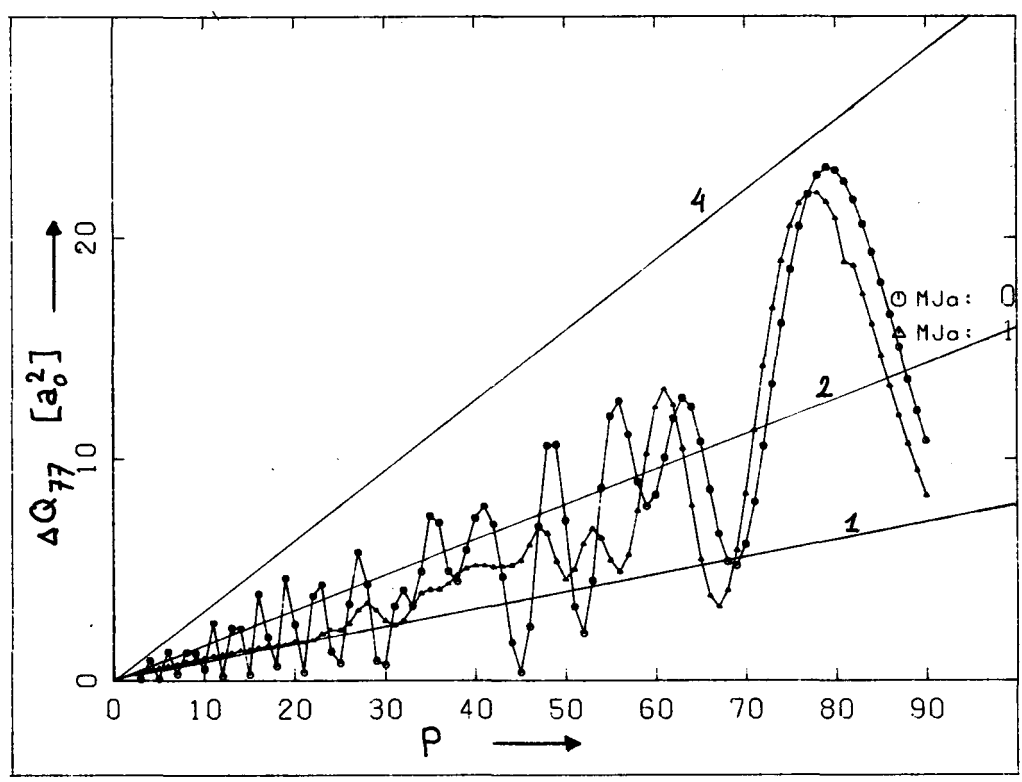
Tabel 6.5: Gepolariseerde doorsnedes voor inelastische overgangen vanuit  $\{\alpha\}_7$  (volgens berekening I).

		$Q_{l7}^{M_7} [\text{\AA}^2]$				
		4	5	6	8	9
$M_7$	0	0.69	3.9	3.4	10.1	9.0
	1	2.75	0.56	12.0	13.6	5.1





a)



b)

Figuur 6.2: Bijdrage per P-waarde aan elastische gepolariseerde werkzame doorsnedes. De ingetekende lijnen duiden een bijdrage aan van een fractie van  $2\pi\lambda^2(P + \frac{1}{2})$ ; deze fractie is in de figuren aangegeven.  
 fig. a:  $\Delta Q_{44}$ ; b:  $\Delta Q_{77}$ . Fig. b wijst op grotendeels inelastische verstrooiing vanuit  $\frac{1}{2}\lambda^2$  voor  $P < 35$ .

Opvallend in figuur (6.2) is verder het oscillerende gedrag voor de doorsnedes bij  $M_k = 0$ , in tegenstelling tot het vrijwel vlakke gedrag voor  $M_k \neq 0$ . Een mogelijke verklaring vinden wij in het feit dat voor  $M_k = 0$  de ingangstoestand bij een bepaalde waarde van  $P$  slechts bij één van de pariteiten  $\pi = \pm 1$  meedoet in de gekoppelde kanalenvergelijking. Immers voor  $M_k = 0$  geldt asymptotisch  $\Omega_k = 0$ , dus

$$\pi = (-)^{P+J}$$

Omdat de pariteit van de  $N$ -basisfuncties gegeven wordt door

$$\pi = (-)^N$$

en  $N$  begrensd wordt door  $|P - J_k| \leq N \leq |P + J_k|$  zien wij dat voor oneven en even  $P$ -waarden het totaal aantal met de  $M_k = 0$ -toestand samenhangende kanaalfuncties wisselt tussen  $J_k$  en  $J_k + 1$ , wat mogelijk het oscillerende gedrag levert.

#### 6.4.2. Inelastische gepolariseerde doorsnedes

In de figuren (6.3) zijn uitgezet de bijdragen per  $P$ -waarde aan de gepolariseerde doorsnedes  $\alpha_{46}$ ,  $\alpha_{56}$ ,  $\alpha_{45}$ ,  $\alpha_{76}$ ,  $\alpha_{47}$ , en  $\alpha_{75}$  volgend uit berekening I. Opnieuw zijn lijnen aangegeven die een bijdrage aanduiden van een fractie van  $2\pi\lambda^2(P+\frac{1}{2})$  per  $P$ -waarde. In tabel (6.8) is de uit de figuren af te leiden grootte-orde van deze bijdragen voor de volledigheid vermeld voor alle overgangen in het  $\{\alpha\}_4 \dots \{\alpha\}_7$ -substelsel.

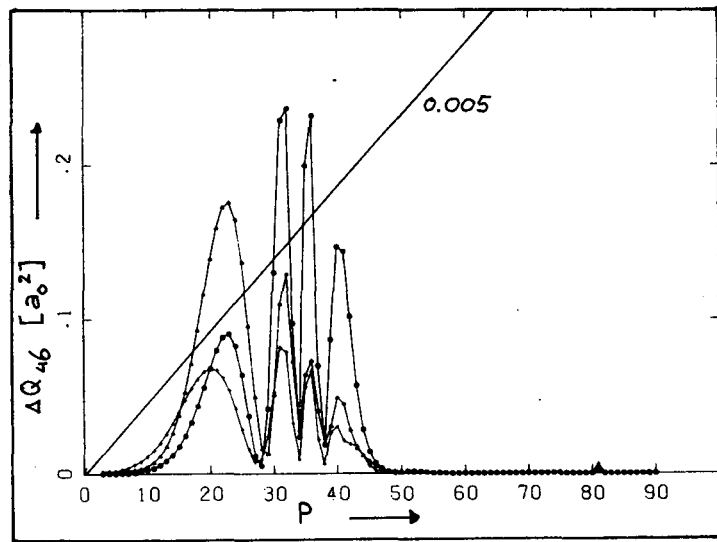
In deze paragraaf zullen wij signaleren of de optredende overgangswaarschijnlijkheden en orientatie-effecten te rijmen zijn met de aanwezigheid van avoided crossings, en welke invloed wij zien van rotatiekoppeling en omkeerpunten.

#### Overgangswaarschijnlijkheden

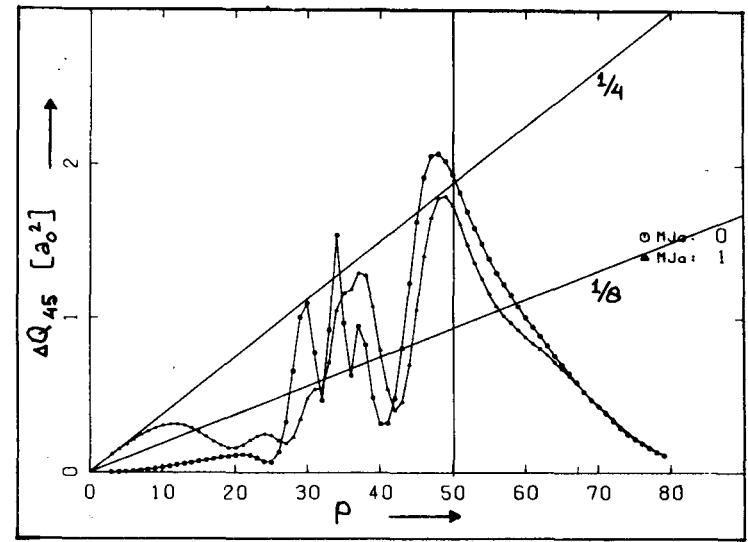
Uit het gemiddelde gedrag per  $P$ -waarde van de uitgezette doorsnedes vinden wij een totale overgangswaarschijnlijkheden voor de overgangen

- $\{\alpha\}_4 \leftarrow \{\alpha\}_5$ ,  $\{\alpha\}_4 \leftarrow \{\alpha\}_7$ ,  $\{\alpha\}_7 \leftarrow \{\alpha\}_6$ ,  $\{\alpha\}_7 \leftarrow \{\alpha\}_5$  :  $2p(1-p) \geq 0.2$
- $\{\alpha\}_4 \leftarrow \{\alpha\}_6$ ,  $\{\alpha\}_5 \leftarrow \{\alpha\}_6$  :  $2p(1-p) \leq 0.02$

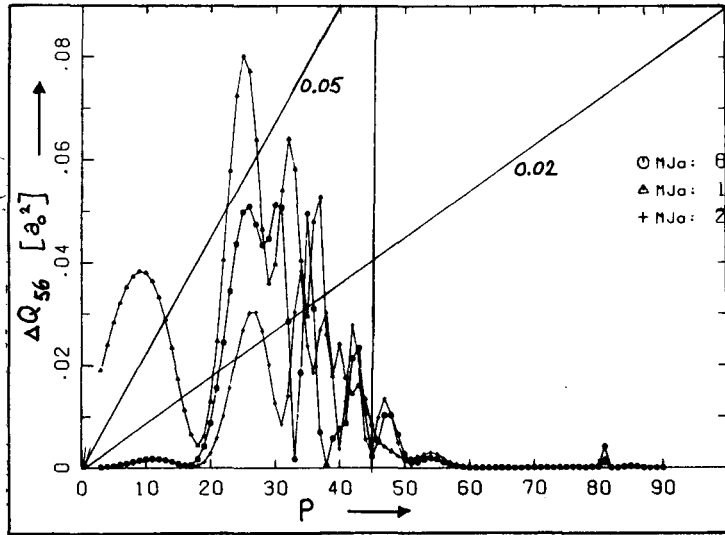
Er is dus sprake van sterke koppeling voor de eerste vier overgangen,



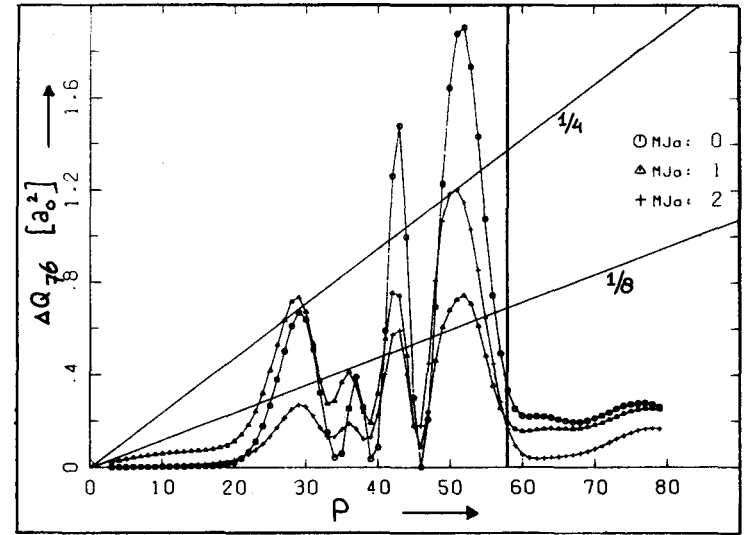
a)



c)



b)



d)

Figuur 6.3: Bijdrage per P-waarde aan inelastische gepolariseerde doorsnedes.

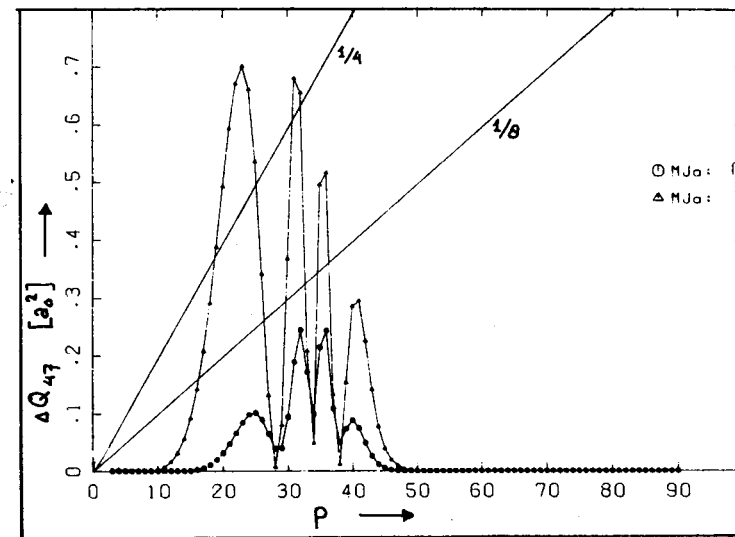
De betekenis van de lijnen is vermeld bij figuur 6.2.

fig. a:  $\Delta Q_{46}$ ; b:  $\Delta Q_{56}$ ; c:  $\Delta Q_{45}$ ; d:  $\Delta Q_{76}$ ; e:  $\Delta Q_{47}$ ; f:  $\Delta Q_{75}$ .

De eerste twee figuren wijzen op een kleine overgangswaarschijnlijkheid, de overige op een grote.

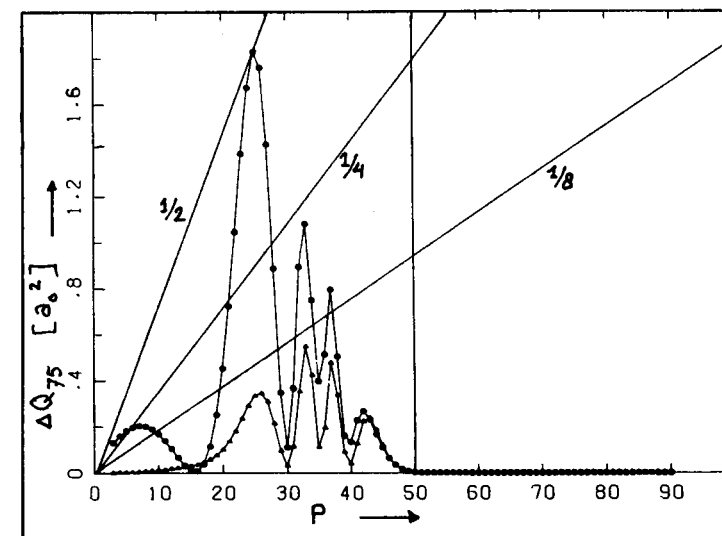
Tabel 6.8: Ordegrootte van de bijdrage per P-waarde aan gepolariseerde doorsnedes  $Q_{\ell k}^{M_k}$ . Vermelding van twee waarden duidt op een onderscheidbaar gedrag in verschillende gebieden.

		$\Delta Q_{\ell k} / \left\{ \pi \lambda^2 (P + \frac{1}{2}) \right\}$				
k	$M_k$	$\ell$	4	5	6	7
4	0		4.0-8.0	0.02-0.01	0.10-0.05	0.50-0.15
	1		4.0-8.0	0.50-0.15	0.10-0.05	0.25-0.10
	2		4.0-8.0	0.50-0.20	0.05	0.25-0.10
5	0		0.50-0.15	4.0-8.0	0.01-0.005	1.0-0.3
	1		0.50-0.15	4.0-8.0	0.005-0.002	0.2
6	0		0.02-0.01	0.04-0.02	4.0-8.0	1.5-0.5
	1		0.02-0.01	0.1-0.02	4.0-8.0	0.50-0.25
	2		0.01-0.005	0.02-0.01	4.0-8.0	0.50-0.25
7	0		1.5-0.25	1.0-0.4	0.50-0.15	2.0-6.0
	1		0.2-0.1	0.2-0.1	1.0-0.25	2.0-6.0



e)

f)



en van zwakke koppeling voor de overige. Wij hadden avoided crossings geconstateerd tussen de adiabatische potentiaalkrommen  $\{\alpha\}_4$  en  $\{\alpha\}_5$ ,  $\{\alpha\}_5$  en  $\{\alpha\}_6$ ,  $\{\alpha\}_5$  en  $\{\alpha\}_7$ , en tussen  $\{\alpha\}_6$  en  $\{\alpha\}_7$  (tabel 3.1). Wij vinden dus overgangswaarschijnlijkheden voor  $\{\alpha\}_4 \leftarrow \{\alpha\}_5$ ,  $\{\alpha\}_5 \leftarrow \{\alpha\}_6$  en  $\{\alpha\}_7 \leftarrow \{\alpha\}_6$  die inderdaad overeenstemmen met de aanwezigheid van direkte curve-crossings, en voor  $\{\alpha\}_7 \leftarrow \{\alpha\}_6$  met het ontbreken daarvan.

De kleine overgangswaarschijnlijkheden bij de overgang  $\{\alpha\}_5 \leftarrow \{\alpha\}_6$  lijkt echter op het eerste gezicht niet in overeenstemming te zijn met de aanwezigheid van een direkte avoided crossing tussen de bijbehorende adiabatische potentiaalkrommen. Deze curve crossing is bovendien vergelijkbaar met die tussen de krommen  $\{\alpha\}_5$  en  $\{\alpha\}_7$  voor  $\Omega=0-$ , zodat wij ook een vergelijkbare overgangswaarschijnlijkheden verwachten. Verder is er juist geen direkte curve crossing tussen de krommen  $\{\alpha\}_4$  en  $\{\alpha\}_7$  terwijl deze overgang toch een grote waarschijnlijkheid heeft. Wij zien echter ook in de figuren in appendix B dat wij de toestand  $\{\alpha\}_4$  wel vanuit  $\{\alpha\}_7$  kunnen bereiken door voor  $\Omega=1$  drie avoided crossings te doorlopen.

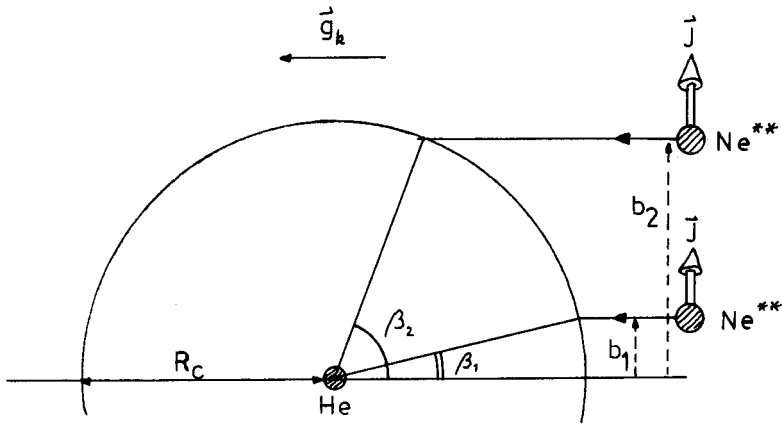
In paragraaf 7.4 laten wij zien dat daarmee de grootte van deze doorsnedes inderdaad kan worden verklaard.

Een meer globale maat voor de overgangswaarschijnlijkheden vinden wij in tabel (6.9). In deze tabel zijn de waarden van  $Q_{lk}$  gegeven, gedeeld door het oppervlak  $\pi R_c^2$  dat wij moeten treffen om de crossing radius  $R_c$  te bereiken. Dit kunnen wij opvatten als een over het gehele gebied van P-waarden gemiddelde, totale overgangskans.

Tabel 6.9: Effectieve overgangswaarschijnlijkheden  $Q_{lk}^{M_k} / \pi R_c^2$

overgang $\{\alpha\}_l \leftarrow \{\alpha\}_k$	$M_k = 0$	$M_k = 1$	$M_k = 2$
$4 \leftarrow 5$	0.22	0.21	-
$6 \leftarrow 5$	0.01	0.02	-
$7 \leftarrow 5$	0.14	0.04	-
$7 \leftarrow 6$	0.18	0.13	0.08

Wij constateren opnieuw dat van de genoemde overgangen  $\{\alpha\}_5 \leftarrow \{\alpha\}_6$  zwak is, terwijl bij de andere, 10-20% van de deeltjes die de crossing-radius bereiken ook daadwerkelijk een overgang maken.



Figuur 6.4: Oriëntatie van de internucleaire as wanneer de crossing radius wordt bereikt. Alleen bij kleine impactparameters ( $b_1 \ll R_C$ ) is de asymptotische oriëntatie bij benadering behouden en daarmee ook de projectie  $\mathcal{J}$  van het elektronisch impulsmoment op de internucleaire as ( $\beta_1 \ll \frac{\pi}{2}$ ,  $\beta_2 \approx \frac{\pi}{2}$ ).

### Oriëntatie-effecten

Voor impactparameters, kleiner dan enkele malen de crossing-radius, is ook zonder locking de stand van  $\vec{j}$  t.o.v. de internucleaire as nog nauwelijks veranderd wanneer de curve-crossing wordt bereikt (c.f. figuur (6.4)).

Dat betekent dat de asymptotische waarde van  $\mathcal{J}$ ,  $|M_k|$ , voor kleine P-waarden direct bepalend is voor het adiabatische oppervlak waarop de beweging plaatsvindt. In paragraaf 3.2 constateerden wij al dat potentiaalcurven òf sterk gekoppeld zijn voor  $\mathcal{J} = 1$  en nietvoor  $\mathcal{J} = 0_{\pm}$ , òf precies andersom en wij verwachtten op grond daarvan een oriëntatie-effect te zien. Uit het bovenstaande volgt dat dit het meest geprononceerd zal zijn voor kleine waarden van P.

In de figuren (6.3) tonen de doorsnedes  $Q_{45}$ ,  $Q_{76}$  en  $Q_{75}$  inderdaad in het binnengebied het te verwachten oriëntatie-effect (vergelijk tabel 3.1). Voor grotere P-waarden zien wij i.h.a. dat het effect omkeert, omdat nu de internucleaire as sterk is gedraaid wanneer de crossing radius wordt bereikt. Bijdragen aan een doorsnede bij grote P-waarden middelen daarom, een bij kleine P-waarden opgebouwd oriëntatie-effect uit. Bij de overgang  $Q_{75}$  is deze uitmiddeling blijkens de figuren van veel minder belang dan voor  $Q_{45}$ , zodat de over alle P-waarden gesommeerde doorsnedes  $Q_{75}^I$  en  $Q_{75}^O$  een veel groter oriëntatie-effect te zien geven dan  $Q_{45}^I$  en  $Q_{45}^O$  (vgl. tabel 6.4). In paragraaf 7.5 zullen wij hierop terug komen.

### Omkeerpunten

In de figuren (6.3) is ook aangegeven voor welke P-waarde een deeltjesbaan juist langs de crossing radius scheert; omkeerpunt en crossing radius vallen dan samen. Wij zien dat de doorsnedes  $Q_{45}$  en  $Q_{76}$  in hoofdzaak worden gevormd langs dit soort deeltjesbanen. Daartegen liggen grote bijdragen aan  $Q_{35}$  in het gebied van t.o.v.  $R_C$  kleinere impactparameters. Hieruit maken wij op dat de overgangen  $\{4\}_4 \leftarrow \{4\}_5$  en  $\{4\}_7 \leftarrow \{4\}_6$  waarschijnlijk zijn bij lage radiële snelheden, terwijl bij hoge radiële snelheid de overgang  $\{4\}_7 \leftarrow \{4\}_5$  juist waarschijnlijk is.

In paragraaf 7.5 laten wij zien dat dit voortkomt uit de sterkte van de radiële koppeling bij de crossing-radius.

## 7. SEMIKLASSIEKE BESCHRIJVING

In het voorgaande hebben wij steeds geprobeerd inelastische overgangen tussen  $N\epsilon^{**}\{\alpha\}_k$ -toestanden te verklaren uit het optreden van avoided crossings tussen de bijbehorende potentiaalkrommen. In dit hoofdstuk zullen wij zien of werkzame doorsnedes, berekend met een semiklassiek model dat direkt aansluit bij zo'n beschrijving, dan ook overeenstemmen met de "echte" (uit de volledige quantummechanische berekening volgende) doorsnedes.

### 7.1. Landau-Zener theorie

In de Landau-Zener theorie [NIK68, CHI79] wordt de elektronische toestand van een twee-toestandssysteem beschreven met behulp van diabatische basisfuncties  $|k\rangle$  en  $|l\rangle$ . Deze zijn asymptotische oplossingen van de moleculaire hamiltoniaan  $H^{mol}$ , welke dan ook alleen voor  $R \rightarrow \infty$  diagonaal is in de diabatische basis. De matrix van  $H^{mol}$ ,

$$H^{mol} = \begin{pmatrix} H_{kk} & H_{kl} \\ H_{lk} & H_{ll} \end{pmatrix} \quad (7.1)$$

bevat op de diagonaal de diabatische potentiaalcurven  $H_{kk}(R)$  en  $H_{ll}(R)$ . De niet-diagonaalelementen geven de koppeling tussen de diabatische toestanden. Uit  $H^{mol}$  kunnen wij door diagonalisatie de adiabatiese eigen toestanden  $|\varphi_k\rangle$  en  $|\varphi_l\rangle$  vinden als lineaire, van  $R$  afhankelijke combinaties van  $|k\rangle$  en  $|l\rangle$ .

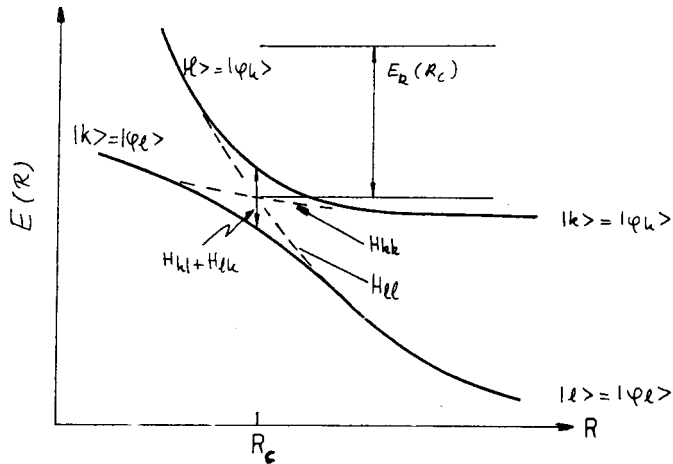
Wanneer de diabatische curven een snijpunt hebben, dan wordt de energieafstand tussen de adiabatiese eigenwaarde-krommen  $E_k(R)$  en  $E_l(R)$  bij de crossing-radius  $R_c$  gegeven door

$$E_k(R_c) - E_l(R_c) = H_{lk}(R_c) + H_{kl}(R_c) \quad (7.2)$$

Zij snijden elkaar dus niet. Dit houdt in dat de adiabatiese toestanden bij  $R_c$  van karakter wisselen:  $|\varphi_k\rangle$  valt voor  $R > R_c$  samen met  $|k\rangle$ , maar voor  $R < R_c$  met  $|l\rangle$ . In de buurt van  $R_c$  hangen de adiabatiese eigenvectoren sterker af van de internucleaire afstand omdat zij daar bestaan uit sterk wisselende combinaties van de (slechts zwak  $R$ -afhankelijke) diaba-



tische eigenvectoren. Deze hele situatie is typisch voor avoided crossings. Zie hierbij ook figuur (7.1).



Figuur 7.1: Adiabatische (-) en diabatische (--) potentiaalkrommen.

Waar diabatische potentiaalkrommen elkaar snijden veranderen adiabatische eigenvectoren van (diabatisch) karakter. De energie-afstand tussen adiabatische potentiaalkrommen bij de crossing-radius is  $H_{lk}(R_c) + H_{kl}(R_c)$ .

In de limiet van heel lage én van heel hoge botsingsenergie heeft een avoided crossing geen invloed op de initiële toestand: In de limiet van oneindig hoge snelheid is de tijd waarin bij  $R_c$  het koppelingselement  $H_{lk}(R)$  wordt gevoeld zowel bij de ingaande als bij de uitgaande beweging zo kort dat in beide gevallen de diabatische curve wordt gevolgd. Evenzo is in de limiet van zeer lage snelheid de koppeling  $H_{lk}$  bij  $R_c$  juist zeer effectief en wordt de crossing altijd adiabatisch doorlopen.

Inelastische overgangen ontstaan nu juist wanneer bij de ingaande beweging de crossing éénmaal de diabatische en éénmaal over de adiabatische potentiaalkromme wordt doorlopen.

In het tussenliggende snelheidsgebied bestaat er dan een kans  $p$  dat van diabatische curve wordt gewisseld; de kans dat bij de ingaande beweging de crossing adiabatisch wordt doorlopen en bij de uitgaande beweging diabatisch, is dan gelijk aan  $p(1-p)$ . Wanneer wij bedenken dat ook het omgekeerde proces aanleiding geeft tot een inelastische overgang, dan volgt dat de totale kans op een overgang gegeven wordt door

$$P_{lk} = p(1-p) + (1-p)p = 2p(1-p) \quad (7-3)$$

met de maximale waarde  $P_{lk} = \frac{1}{2}$ .

Voor de vier nivo's  $\{\alpha\}_{4,5,6,7}$  hebben wij te maken met vier avoided crossings. Om niet steeds aan te hoeven geven tussen welke adiabatische potentiaalcurven ze optreden, zullen wij in het vervolg de in tabel (7.1) gegeven nummering aanhouden.

Tabel 7.1: Nummering van avoided crossings. Aangegeven is tussen welke adiabatische potentiaalkrommen de genummerde curve-crossings optreden.

nummer	curve crossing tussen	$\Omega$
1	$\{\alpha\}_4, \{\alpha\}_5$	1
2	$\{\alpha\}_5, \{\alpha\}_6$	1
3	$\{\alpha\}_7, \{\alpha\}_6$	1
4	$\{\alpha\}_5, \{\alpha\}_7$	0-

## 7.2. Overgangswaarschijnlijkheid

Wanneer wij een lineaire benadering van de diabatische potentiaalkrommen mogen gebruiken volgens

$$H_{kk}(R) = H_{kk}(R_c) - F_k(R - R_c) \quad (7.4)$$

$$H_{ll}(R) = H_{ll}(R_c) - F_l(R - R_c)$$

met

$$F_k = - \left. \frac{\partial H_{kk}}{\partial R} \right|_{R=R_c}, \quad F_l = - \left. \frac{\partial H_{ll}}{\partial R} \right|_{R=R_c} \quad (7.5)$$

en de koppelingselementen in de buurt van  $R_c$  met een constante mogen benaderen

$$H_{lk}(R) = H_{kl}(R) = H_{lk} = \text{constant} \quad (7.6)$$

dan is het mogelijk een analytische uitdrukking te vinden voor de totale overgangswaarschijnlijkheid  $P_{lk}$  van vergelijking (7.3) [NIK68]:

$$P_{lk} = \pi b^2 [Ai(-\varepsilon b)]^2 \quad (7.7)$$

Hierin is  $Ai(x)$  de Airy-functie en

$$\varepsilon = \frac{E_0(R_c)}{2 H_{lk}} \cdot \frac{F_k - F_l}{(F_k F_l)^{1/2}} \quad (7.8a)$$

$$b = \frac{2 H_{lk}}{F_k - F_l} \left( \frac{2\mu/\hbar^2}{(F_k - F_l) \sqrt{F_k F_l}} \right)^{1/3} \quad (7.8b)$$

met  $E_0(R_c)$  de radiële energie ter plaatse van de curve-crossing.

Voor radiële energieën  $E_0(R_c) \gg H_{lk}$  is uitdrukking (7.7) na middeling over oscillaties gelijk aan de oorspronkelijke Landau-Zener formule:

$$P_{lk} = 2p(1-p) \quad (7.9a)$$

$$p = \exp(-2\pi\delta) \quad (7.9b)$$

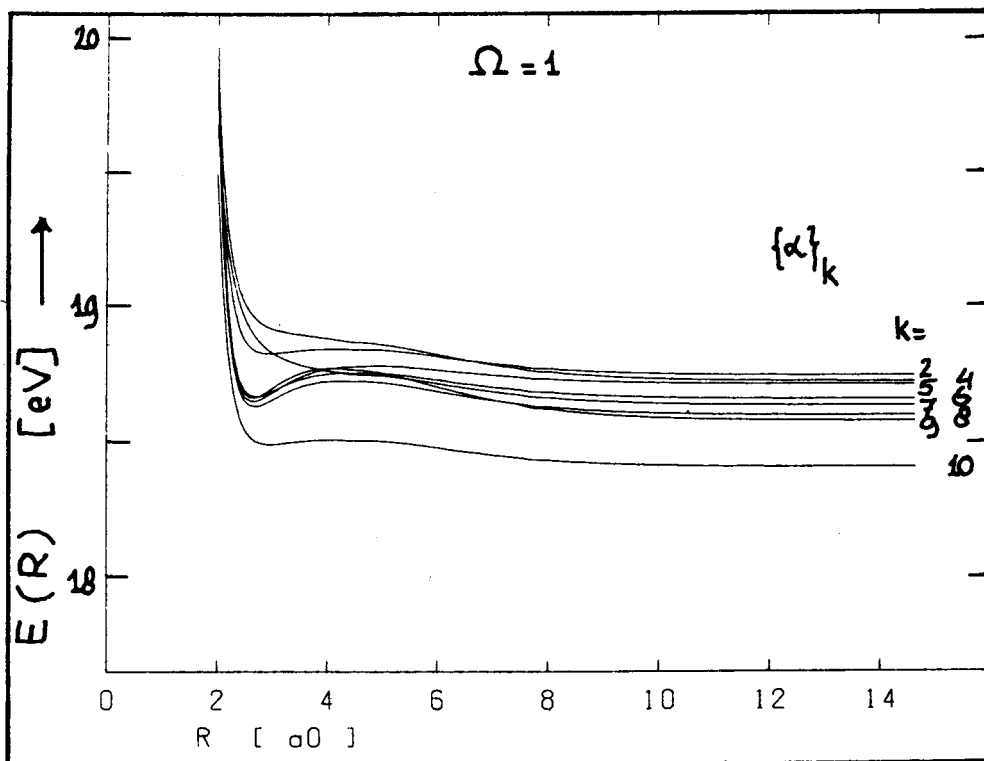
$$\delta = b^{3/2} / \partial \sqrt{\varepsilon} = \frac{2 H_{lk}^2}{\hbar v(R_c) (F_k - F_l)} \quad (7.9c)$$

met  $v(R_c)$  de radiële snelheid. In deze uitdrukking herkennen wij weer de hoge en lage snelheidslimieten van paragraaf 7.1: zowel bij hoge snelheid (dus  $\delta \gg 1$ ) als bij lage snelheid ( $\delta \ll 1$ ) is de totale kans  $P_{lk} \approx 0$  en vindt geen overgang plaats.

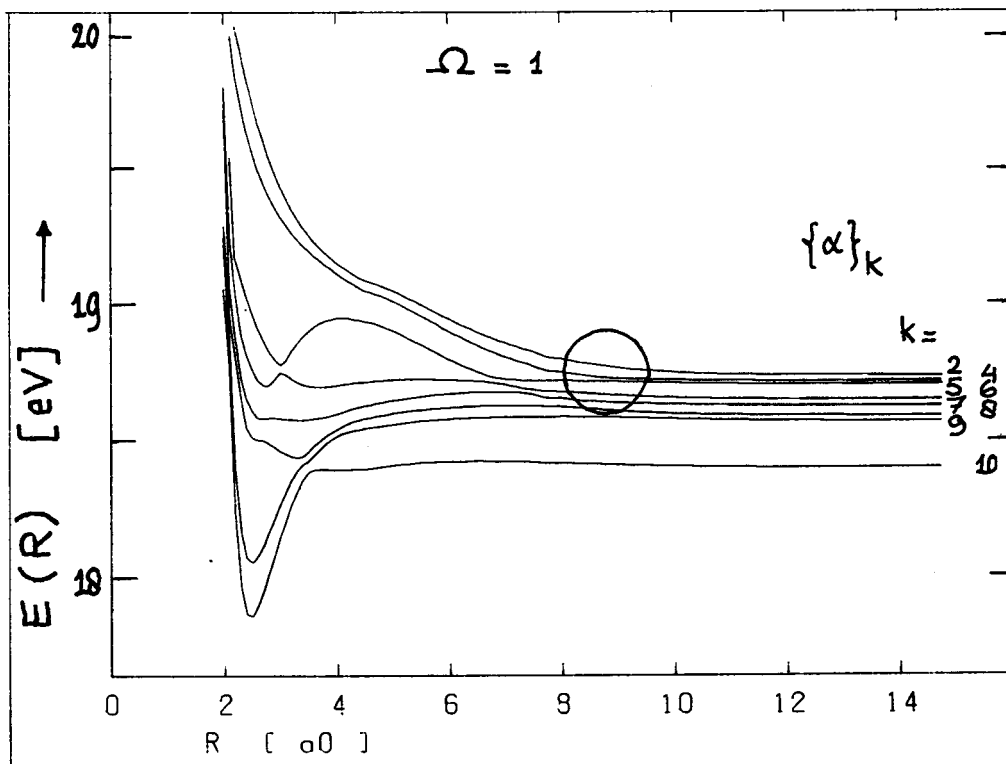
### 7.3. Keuze van diabatische potentiaalkrommen

De keuze van de geschikte diabatische functies  $|k\rangle$  en  $|l\rangle$  is niet eenduidig voor het systeem  $Ne^{**}+He$ . Formeel moeten zij slechts voldoen aan de eisen dat zij asymptotisch samenvallen met adiabatische eigenfuncties  $|\psi_k\rangle$  en  $|\psi_l\rangle$  en in de buurt van een curve-crossing veel minder sterk van  $R$  afhangen dan de adiabatische. Wij zoeken echter die diabatische basis waarin bij een avoided crossing tussen de adiabatische krommen, de diabatische elkaar juist wél snijden.

Voor het systeem  $Ne^{**}+He$  zouden wij dan kunnen proberen de diabatische toestanden gelijk te kiezen aan atomaire  $Ne^{**}$ -toestanden, die immers helemaal niet van  $R$  afhangen. De diabatische potentiaalkrommen zijn ons dan bekend, want zij worden gegeven door de diagonaalelementen van de operator  $V_I$  op de atomaire basis. In figuur (7.2) zijn deze krommen gegeven voor  $\Omega = 1$ . Wanneer wij ze vergelijken met de adiabatische potentiaalkrommen van appendix B, dan zien wij echter dat wij de avoided crossings niet kunnen beschrijven met de gegeven diabatische potentiaalkrommen, omdat zij elkaar niet snijden bij  $R = R_c$ .



Figuur 7.2: Diabatische potentiaalkrommen voor  $\Omega = 1$ , gegeven door de diagonaalelementen van  $V_I$  op de atomaire basis. Zij verschillen sterk van de moleculaire potentiaalkrommen (vergelijk appendix B).



Figuur 7.3: Diabatische potentiaalkrommen, bepaald door uitschakeling van de fysische koppelingen tussen de atomaire toestanden  $\{\alpha\}_4$  en  $\{\alpha\}_5$ . De diabatische krommen  $\{\alpha\}_5$  en  $\{\alpha\}_6$  snijden elkaar niet bij de crossing-radius  $R_c = 8.6a_0$ . (aangegeven door de circel).

Het is dus niet toegestaan álle fysische koppelingen tussen atomaire  $Ne^{**}$ -toestanden uit te schakelen. Wij zouden nu kunnen verwachten dat wij de gezochte diabatische oppervlakken kunnen vinden door alleen de koppelingen uit te schakelen tussen die atomaire  $Ne^{**}$ -toestanden waarnaar de bij de curve-crossing betrokken adiabatistische toestanden dissociëren. In figuur (7.3) tonen wij de op deze wijze verkregen diabatische potentiaal-krommen  $\{\alpha\}_4$  en  $\{\alpha\}_5$ . Zij snijden elkaar niet, en vormen dus ook niet de diabatische krommen waarnaar wij op zoek zijn.

Wij hebben daarom een schatting voor de diabatische potentiaalkrommen afgeleid uit de adiabatistische krommen zelf, door hiertussen een verbinding te maken van de vorm van vergelijking (7.4) die op het oog goed aansluit. Het koppelingselement  $H_{lk}$  volgt dan uit de minimale opsplitsing tussen de adiabatistische krommen (c.f. uitdrukking (7.2)).

Uit de vorm van de adiabatistische  $\{\alpha\}_k$ -krommen van figuur (7.6) zien wij direkt dat het model van vergelijking (7.4)-(7.6) voor curve-crossings tussen moleculaire  $Ne^{**}+He$ -potentialen niet exact geldig is. Wij kunnen dus niet verwachten dat de overgangswaarschijnlijkheden precies gegeven worden door vergelijking (7.7). Wij kunnen echter de hellingen van de gevonden diabatische curven en het koppelingsmatrixelement  $H_{lk}$  zodanig aanpassen dat een goede aansluiting bestaat tussen de uitkomsten van gekoppelde kanalenberekeningen en de berekeningen van dit hoofdstuk. Wij vinden dan "effectieve" parameters waarmee wij de avoided crossings kunnen karakteriseren. Wanneer de uit deze parameters volgende diabatische potentiaalkrommen en koppelingsmatrixelementen dan een redelijke beschrijving van de vorm van de avoided crossings geven, dan mogen wij concluderen dat de in dit hoofdstuk gebruikte beschrijving aansluit bij de werkelijkheid.

#### 7.4. Werkzame doorsnedes

De overgangswaarschijnlijkheid  $P_{lk}$  kan uit vergelijking (7.7) worden berekend voor deeltjes die zich over de snijdende diabatische oppervlakken bewegen. Omdat in ons geval avoided crossings steeds voor één waarde van  $\Omega$  (zeg voor  $\Omega = \Omega_k$ ) optreden, moeten wij de bezetting van zuivere  $\Omega$ -toestanden bij de curve-crossing weten.

Voor een gepolariseerde begintoestand nemen wij aan dat wij de bezetting  $g_k^{\Omega_k}$  kunnen afleiden uit de hoek  $\beta$  tussen asymptotische relatieve snelheid en de internucleaire as op het moment dat de curve-crossing wordt bereikt. Hiertoe gebruiken wij het draaimatrix-formalisme van paragraaf 2.4.3. Uitgaande van een gepolariseerde begintoestand  $|\alpha_k J_k M_k\rangle$  vinden wij dan

$$g_k^{\Omega_k} = \begin{cases} \left\{ d_{M_k, \Omega_k}^{(J_k)}(\beta) \right\}^2 + \left\{ d_{M_k, -\Omega_k}^{(J_k)}(\beta) \right\}^2 & (\Omega_k > 0) \\ \left\{ d_{M_k, 0}^{(J_k)}(\beta) \right\}^2 & (\Omega_k = 0) \end{cases} \quad (7.10)$$

De draaimatrices zijn in appendix D gegeven voor  $J = 1$  en  $J = 2$ . Voor de orde van de draaimatrices hebben wij  $J_k$  genomen. We veronderstellen daarmee dat in de buurt van de curve-crossing de verwachtingswaarde  $\langle J_k^2 \rangle$  nog redelijk goed bepaald is en gegeven wordt door zijn asymptotische waarde. Dit is bijvoorbeeld het geval wanneer de begintoestand tot aan de curve-crossing zijn atomaire karakter behoudt.

Wanneer wij verder aannemen dat de deeltjesbanen recht zijn, dan hangt  $\beta$  bij de ingaande  $\left(\frac{\partial R}{\partial t} < 0\right)$ -beweging met het rotationeel quantumgetal  $N$  samen volgens

$$\sin \beta = \frac{b}{R_c} \approx N \frac{\lambda}{R_c} \quad (7.11)$$

met  $b$  de impactparameter van de botsing. Bij de uitgaande  $\left(\frac{\partial R}{\partial t} > 0\right)$ -beweging geldt vergelijking (7.11) eveneens. Dit levert dus dezelfde bezettingen op. Wanneer een deeltjesbaan een impactparameter  $b > R_c$  heeft en er toch een bijdrage aan de werkzame doorsnede is, lijkt  $\beta = \pi/2$  een geschikte keuze. Bij deze hoek is de internucleaire afstand zoveel mogelijk gelijk aan  $R_c$ . Ook de Landau-Zener overgangswaarschijnlijkheid hangt van  $N$  af via de radiële energie. Deze wordt t.g.v. de centrifugaal-potentiaal bij  $R = R_c$  gegeven door

$$E_0(R_c) = E_0 - \frac{N(N+1)\hbar^2}{2\mu R_c^2} \quad (7.12)$$

met  $E_0$  de botsingsenergie. Bovendien modificeert de centrifugaal-potentiaal de hellingen van diabatische potentiaalkrommen. Dit nemen wij mee door de helling van de centrifugaal-potentiaal daarbij op te tellen en dus in vergelijking (7.7)  $F_l$  en  $F_k$  te vervangen door

$$F_i' = F_i + \frac{N(N+1)}{\mu R_c^3} \quad (i = k, l) \quad (7.13)$$

Bestaat er nu een totale overgangswaarschijnlijkheid  $P_{lk}$  om vanuit toestand  $\{\alpha\}_k$  de toestand  $\{\alpha\}_l$  te bereiken over potentiaalkrommen bij  $\Omega = \Omega_k$ , dan vinden wij een bijdrage aan de inelastische, gepolariseerde werkzame doorsnede  $Q_{lk}^{M_k}$  van

$$\Delta Q_{lk}^{M_k}(N) = 2\pi \tilde{\lambda}^2 g_k^{\Omega_k}(N) P_{lk}(N) \left(N + \frac{1}{2}\right) \quad (7.14)$$

Ongepolariseerde doorsnedes vinden wij weer door te sommeren over  $M_k$ , daarbij bedenkend dat maar voor één  $\Omega$  (nl.  $\Omega = \Omega_k$ ) geldt dat  $P_{lk} \neq 0$ .

In het bovenstaande model zijn gepolariseerde doorsnedes bij verschillende  $M_k$  via de relatie

$$\Delta Q_{lk}^{M_k}(N) / \Delta Q_{lk}^{M_k'}(N) = g_k^{\Omega_k}(N) / g_k^{\Omega_k'}(N) \quad (7.15)$$

van elkaar afhankelijk.

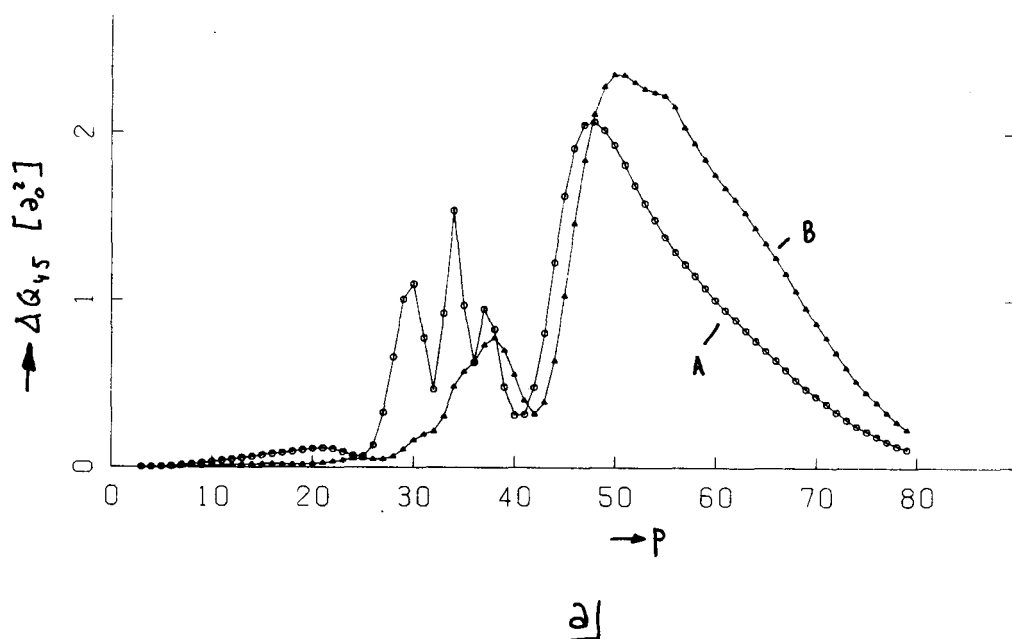
Dit zijn goniometrische uitdrukkingen in  $N\tilde{\lambda}/R_c$ . In het volgende gaan we er weer van uit dat we  $N$  mogen vervangen door het totaal impulsmoment-quantumgetal  $P$ .

Wij kunnen dan onderzoeken of dit model realistisch is door na te gaan of de werkzame doorsnedes uit de volledige quantummechanische berekeningen op de manier van vergelijking (7.15) samenhangen. In figuur (7.4) geven wij de rechtstreeks berekende quantummechanische bijdrage  $\Delta Q_{lk}^{M_k}$  aan gepolariseerde doorsnedes, in vergelijking met bijdragen die met behulp van vergelijking (7.15) uit eveneens quantummechanische doorsnedes voor  $M_k' \neq M_k$  werden berekend.

Voor  $P$ -waarden, corresponderend met impactparameters  $b \ll R_c$ , is de overeenstemming tussen de getekende curven goed, uitgezonderd voor

curve-crossing ① van de overgang  $\{\alpha\}_4 \leftarrow \{\alpha\}_5$ . Voor de laatste overgang hebben we in het gebied  $P < 40$  misschien te maken met deeltjes die via andere overgangen een bijdrage aan de doorsnedes leveren. Deze bijdrage is echter klein en dus van weinig belang. Ook zien we dat bij deze overgang in het klassiek verboden gebied ( $P > 50$ ) de keuze  $\beta = \pi/2$  niet al te slecht is. Bij de overgang  $\{\alpha\}_7 \leftarrow \{\alpha\}_5$  blijft de overeenstemming tussen de getekende curven goed tot aan  $P = 42$ . Hierna wordt de afwijking steeds groter, totdat bij  $P = 48$  de factor  $\sin^2 \beta / \cos^2 \beta$  van vergelijking (7.15) singulier wordt en  $Q_{75}^1$  niet meer uit  $Q_{75}^0$  kan worden berekend. Voor de overgang  $\{\alpha\}_7 \leftarrow \{\alpha\}_6$  tenslotte zien we dat voor  $P$ -waarden  $P > 38$  de getekende krommen ruwweg een factor 2 verschillen.

De conclusie is dat het in het voorgaande gegeven model geen volledig overeenstemmende resultaten oplevert. Wel moet het mogelijk zijn hiermee resultaten te behalen, die in ieder geval de grootte van een oriëntatie-effect redelijk kunnen afschatten.

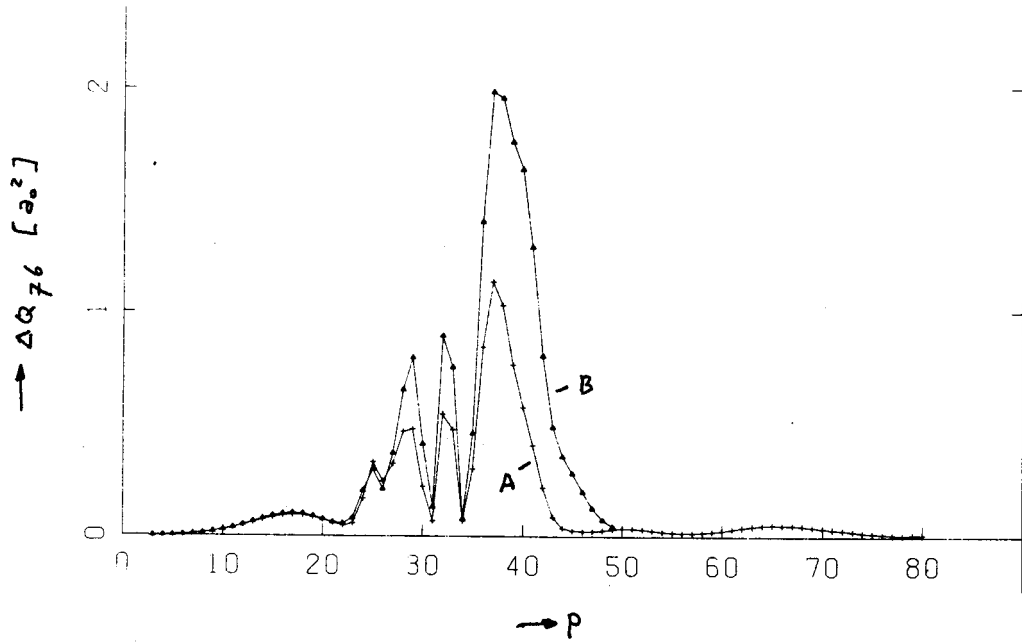


Figuur 7.4: Rechtstreeks berekende bijdragen  $\Delta Q_{1\frac{1}{2}}^M$  aan quantummechanische gepolariseerde doorsnedes (kromme "A"), en bijdragen, berekend m.b.v. vgl. (7.15) uit quantummechanische bijdragen  $\Delta Q_{1\frac{1}{2}}^{M'}$  ( $M' \neq M$ ) (kromme "B").

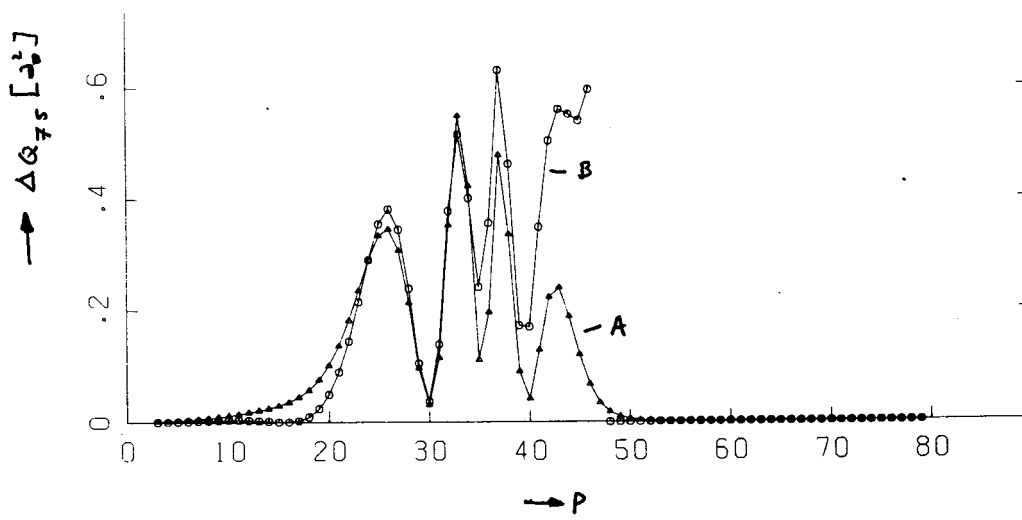
- Fig a:  $Q_{45}^0$  ("B" berekend uit  $Q_{45}^1$ ).
- Fig b:  $Q_{76}^2$  ("B" berekend uit  $Q_{76}^1$ ).
- Fig c:  $Q_{75}^1$  ("B" berekend uit  $Q_{75}^0$ ).



94



b)

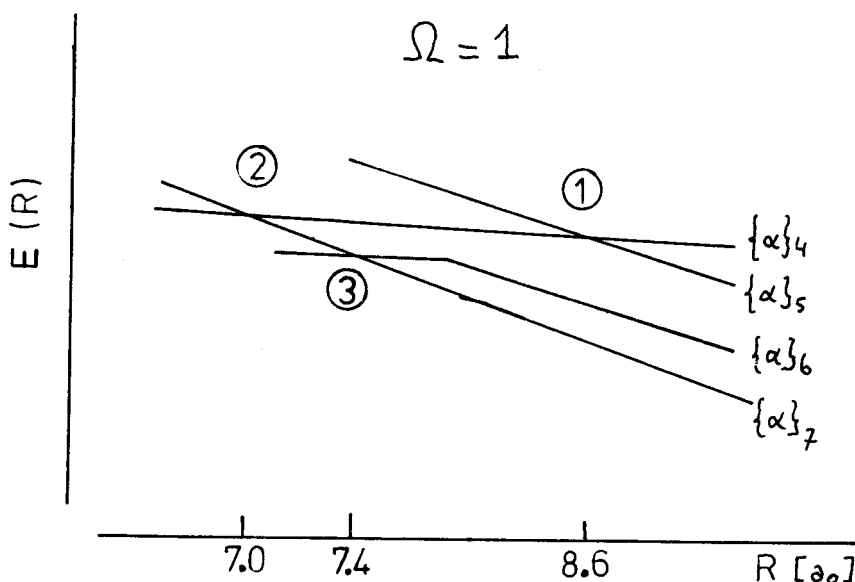


e)

### 7.5. Multiple curve-crossing model voor $\Omega = 1$

In hoofdstuk 6 vonden wij dat de werkzame doorsnedes voor de overgangen  $\{\alpha\}_6 \leftarrow \{\alpha\}_5$  en  $\{\alpha\}_4 \leftarrow \{\alpha\}_7$  niet in overeenstemming leken te zijn met de aanwezigheid resp. afwezigheid van een curve-crossing tussen de bijbehorende adiabatische potentiaalkrommen. Wij merkten op datze verklaard konden worden doordat deze overgangen via meerdere avoided crossings tot stand komen.

In figuur (7.5) hebben wij de adiabatische potentiaalkrommen bij  $\Omega = 1$  vervangen door diabatische. Wij zien direkt dat de curve-crossing tussen de adiabatische toestanden  $\{\alpha\}_5$  en  $\{\alpha\}_6$  eigenlijk gevormd wordt door de diabatische potentiaalkrommen behorend bij de toestanden  $\{\alpha\}_4$  en  $\{\alpha\}_7$ .



Figuur 7.5: De curve-crossings ①, ② en ③ (zie tabel 7.1) verbonden door diabatische potentiaalkrommen (vgl. de adiabatische potentiaalkrommen in appendix B voor  $\Omega = 1$ ).

Wij introduceren nu een multiple curve-crossing model waarin wij de totale kans  $P_{ek}$  van vergelijking (7.14) uitrekenen door alle manieren na te gaan waarop wij van toestand  $\{\alpha\}_k$  naar de toestand  $\{\alpha\}_e$  kunnen geraken. De kans dat één zo'n weg wordt gevolgd vinden wij uit de deeltansen  $p_1$ ,  $p_2$  en  $p_3$  dat de curve crossings ①, ② resp. ③ diabatisch worden doorlopen. Als voorbeeld beschouwen wij de overgang  $\{\alpha\}_7 \leftarrow \{\alpha\}_4$ . Vanuit  $\{\alpha\}_7$  kunnen wij  $\{\alpha\}_4$  bereiken door ① diabatisch te doorlopen, ② éénmaal diabatisch en eenmaal adiabatisch, en ③ weer diabatisch. De totale kans  $P_{ek}$  wordt dus gegeven door

$$P_{74} = p_1 \cdot 2p_2(1-p_2) \cdot p_3 \quad (7.16)$$

Voor alle andere mogelijke overgangen gelden analoge relaties.

Nu wij de kansen  $P_{ek}$  kennen, kunnen wij in principe m.b.v. vergelijking (7.14) alle inelastische werkzame doorsnedes berekenen die tot stand komen via curve-crossings bij  $\Omega = 1$ . Wanneer wij meerdere curve-crossings moeten passeren, moeten wij daarbij echter rekening houden met een mogelijke verandering van de bezettingen  $g_k^{\Omega}$  van zuivere  $\Omega$ -toestanden op het traject tussen de snijpunten ① en ② en tussen ② en ③. Bij de beweging tussen deze punten draait immers de internuclaire as. In de berekening blijkt echter dat aan overgangen die via meerdere curve-crossings tot stand komen, alleen bijdragen bestaan van deeltjesbanen met een impactparameter  $R < 6a_0$ . Omdat dit voldoende kleiner dan de kleinste crossing-radius is ( $R_c = 7.0 a_0$ ), mogen wij daarom aannemen dat op het traject tussen verschillende curve-crossings het quantumgetal  $\Omega$  een behouden grootheid is.

Met het bovenstaande hebben wij ongepolariseerde doorsnedes berekend voor alle inelastische overgangen binnen het beschouwde multiplet, met uitzondering van de overgang  $\{ \alpha_3 \}_7 \leftarrow \{ \alpha_3 \}_5$  en het inverse proces. Deze toestanden zijn immers sterk gekoppeld door de directe curve-crossing ④ voor  $\Omega = 0^-$ . De hellingen en koppelingselementen van de crossings werden gevarieerd om een zo goed mogelijke overeenstemming tussen de uitkomsten van het hier beschreven model en die van gekoppelde kanalen berekening I (zie tabel 6.1) te verkrijgen.

In tabel (7.2) vergelijken wij de uitkomsten van beide berekeningen. Gegeven de eenvoud van het gehanteerde model en de soms grove benadering van de Airy-functie van vergelijking (7.6) die werd toegepast, is er een zeer goede overeenstemming bereikt. Deze is des te meer tevredenstellend wanneer wij weten dat de gekoppelde kanalenberekening per energiepunt twee uur rekentijd vergde op de Burroughs B7900 computer, wat wij moeten vergelijken met slechts één minuut op een microcomputer in een taal op interpretatieve basis voor de Landau-Zener berekening.

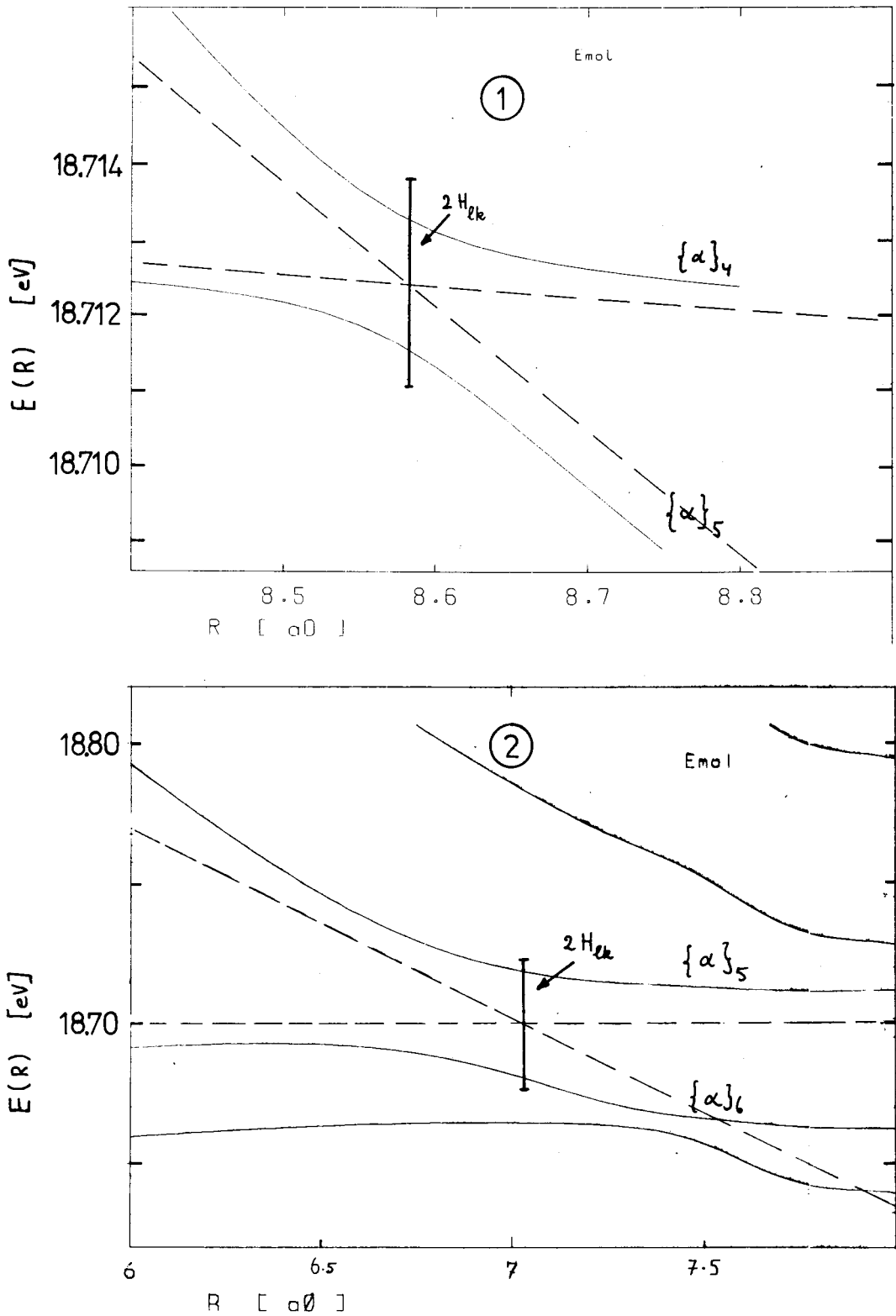
In tabel (7.3) geven wij verder de in de berekening gebruikte hellingen en koppelingselementen van de curve-crossings ①, ② en ③. In figuur (7.6) zijn de corresponderende diabatische potentiaalkrommen uitgezet, samen met de adiabatiese. Wij zien dat de diabatische krommen een redelijke beschrijving van de adiabatiese geven. De conclusie die wij hieruit trekken is dat het multiple curve-crossing model voor wat betreft de toestanden  $\{ \alpha_3 \}_4$ ,  $\{ \alpha_3 \}_5$ ,  $\{ \alpha_3 \}_6$  en  $\{ \alpha_3 \}_7$  consistent is met de volledig quantummechanische beschrijving van  $Ne^{**} + He$ -botsingen.

Tabel 7.2: Ongepolariseerde doorsnedes  $Q_{lk}^{Mk}$ , berekend met het Landau-Zener model. Ter vergelijking zijn de doorsnedes van berekening I (zie tabel 6.1) gegeven. De in de berekening gebruikte parameters zijn gegeven in tabel (7.5).

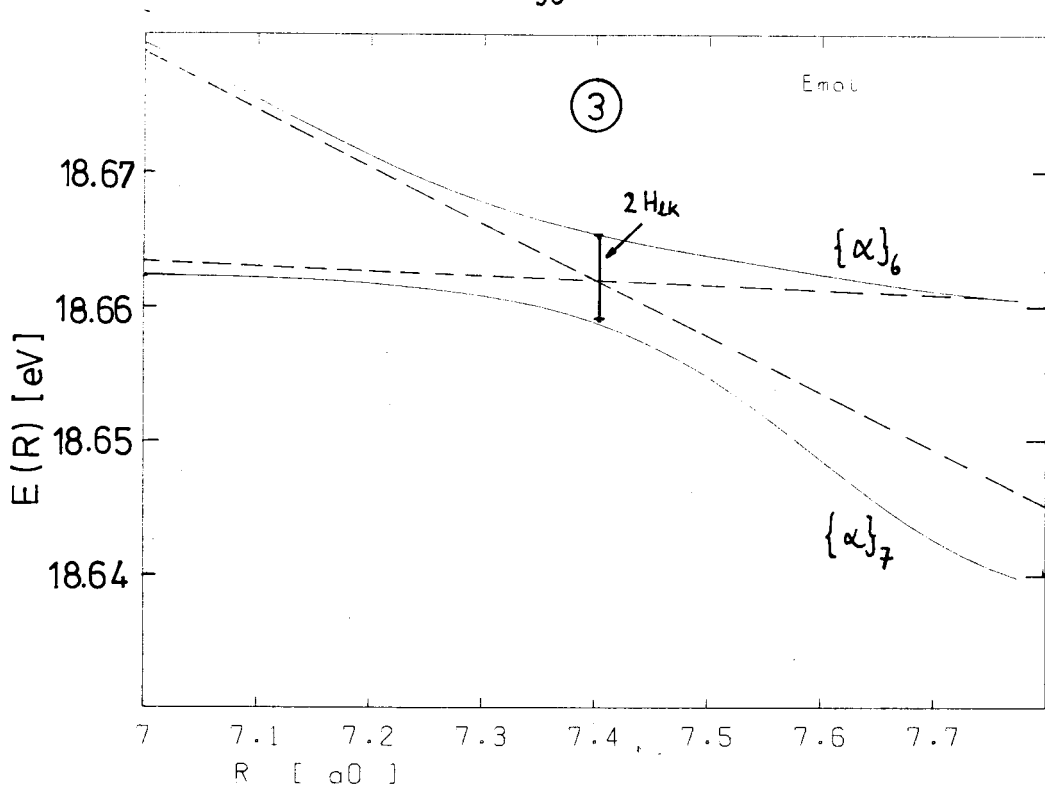
overgang	botsings- energie [meV]	SEMIKLASSIEK $Q_{lk}$ [Å <sup>2</sup> ]	QUANTUMMECHA- NISCH $Q_{lk}$ [Å <sup>2</sup> ]	RELATIEVE AFWIJ- KING [%]
5 ← 4	84	10.5	9.4	10
6 ← 4	84	1.1	1.0	9
7 ← 4	84	3.0	2.6	14
4 ← 5	95	15.5	13.8	11
6 ← 5	95	0.56	0.72	-28
4 ← 6	152	0.61	0.56	7
5 ← 6	152	0.21	0.27	-27
7 ← 6	152	7.4	6.3	15
4 ← 7	176	2.4	2.1	13
6 ← 7	176	10.6	9.2	13

Tabel 7.3: Hellingen  $F_k$  en  $F_l$  en koppelingselementen  $H_{lk}$  gebruikt in de berekening van tabel 7.5.

nr avoided crossing	$F_k$ [eV/a <sub>0</sub> ]	$F_l$ [eV/a <sub>0</sub> ]	$H_{lk}$ [eV]
①	1.5 10 <sup>-2</sup>	1.5 10 <sup>-3</sup>	1.7 10 <sup>-3</sup>
②	7.1 10 <sup>-2</sup>	1.8 10 <sup>-4</sup>	2.1 10 <sup>-2</sup>
③	4.3 10 <sup>-2</sup>	2.6 10 <sup>-3</sup>	3.5 10 <sup>-3</sup>



Figuur 7.6: Adiabatische (-) en "effectieve" diabatische (--) potentiaal-krommen van de curve-crossings ①, ② en ③ (zie tabel 7.1) gebruikt in het multiple curve-crossing model. De helling van de diabatische krommen en de koppelmatrixelementen zijn gegeven in tabel (7.3).



In paragraaf 6.3 merkten wij op dat de doorsnedes  $Q_{45}$  en  $Q_{76}$  in hoofdzaak tot stand komen bij waarden van het impulsmomentquantumgetal  $P$  corresponderend met deeltjesbanen die langs de crossing-radius scheren. Wij weten dat bij de crossing-radius de radiële snelheid voor dit soort deeltjesbanen laag is. Dat er alleen dan een redelijke overgangswaarschijnlijkheid is betekent volgens vergelijking (7.9) dat het koppelmatrixelement  $H_{lk}$  voor deze overgangen relatief klein is.

Dit kunnen wij nu zo opvatten dat er bij de curve-crossings ① en ③ een sterke radiële koppeling tussen de adiabatische toestanden bestaat. Deze is zo sterk dat wij in feite altijd "doorschieten", tenzij de verblijftijd in de buurt van de crossing-radius groot is. Voor curve-crossing ② geldt volgens de Landau-Zener berekening juist het tegenovergestelde. Deze kan alleen bij kleine impactparameter, dus hoge snelheid met redelijke kans diabatisch worden doorlopen.

Hieruit kunnen wij nu begrijpen dat zowel volgens de Landau-Zener- als ook volgens de gekoppelde kanalen berekening de doorsnede  $Q_{65}$  klein en  $Q_{47}$  groot is.

Wanneer wij met hoge snelheid binnen komen op de potentiaalkromme van toestand  $\{\alpha\}_7$ , dan passeren wij curve-crossing ③ altijd diabatisch. Curve crossing ② wordt nu met goede kans éénmaal diabatisch en éénmaal adiabatisch gepasseerd, en ① weer altijd diabatisch. Wij komen dus direkt in de toestand  $\{\alpha\}_4$  terecht (vgl. figuur 7.8).

Komen wij met hoge snelheid binnen op de kromme  $\{\alpha\}_5$ , dan passeren wij ① altijd diabatisch en kunnen dus nooit in de toestand  $\{\alpha\}_6$  geraken. Bij lage snelheid kan crossing ② juist niet diabatisch worden doorlopen zodat ook dan de overgang  $\{\alpha\}_6 \leftarrow \{\alpha\}_5$  onwaarschijnlijk is. Deze redenering vinden wij in de uitkomsten van tabel (7.2) volledig bevestigd.

### 7.6. Direkt curve-crossing model

Voor overgangen die tot stand komen via één direkte avoided crossing kunnen wij ook gepolariseerde doorsnedes uitrekenen. Deze volgen uit vergelijking (7.14) door sommatie over het quantumgetal  $N$  wanneer wij bij de berekening van de totale overgangskans  $P_{\text{elk}}$  alleen deze ene curve-crossing betrekken. Wij maken dus direkt gebruik van de uitdrukking (7.7). Van de overgang  $\{\alpha\}_4 \leftarrow \{\alpha\}_7$  weten wij inmiddels dat deze alleen bepaald wordt door curve-crossing ② en kunnen daarom ook hiervoor gepolariseerde werkzame doorsnedes berekenen.

Bij de berekening van gepolariseerde doorsnedes met het LZ-model hebben wij opnieuw eerst de hellingen en koppelingsmatricelementen zodanig aangepast dat de ongepolariseerde overeenkomen met doorsnedes volgend uit berekening I van tabel (6.1). Dit levert a.h.w. de gewenste schaling. Deze hellingen en koppelingsmatricelementen zijn gegeven in tabel (7.4). Voor de curve-crossings ①, ② en ③ zien wij ze vrijwel overeenkomen met de in paragraaf 7.4 gebruikte (zie tabel (7.3)), zodat een consistent beeld ontstaat. In figuur (7.7) hebben wij voor curve crossing ④ opnieuw de diabatische krommen uitgezet. Wij zien dat ook hier een zinvolle beschrijving van de adiabatistische potentiaalkrommen wordt gegeven.

De met het LZ-model berekende gepolariseerde werkzame doorsnedes zijn samengebracht in tabel (7.5). Eveneens is in de meeste gevallen een goede overeenstemming bereikt. Alleen voor  $Q_{54}^0$  en  $Q_{67}^0$  vinden wij afwijkingen in de orde van 50%, voor alle andere gegeven doorsnedes liggen ze tussen de 0 en 20%.

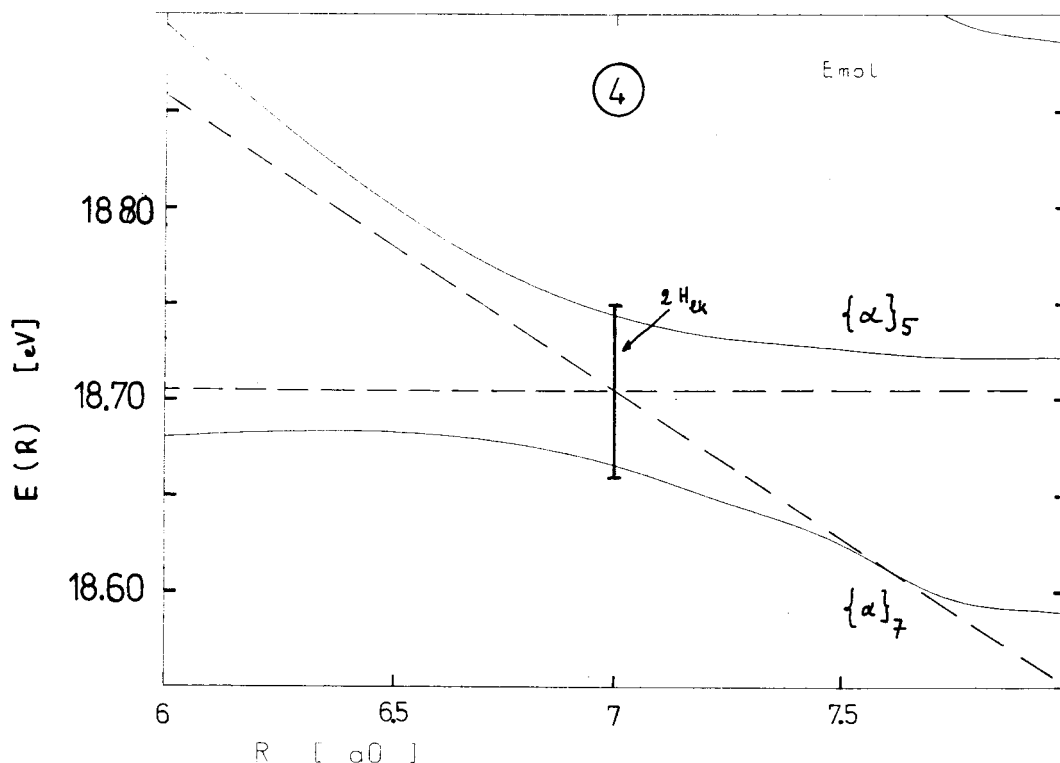
Tabel 7.4: Hellingen van diabatische krommen  $F_k$  en  $F_l$  en koppelmatrixelement  $H_{lk}$  gebruikt in de berekening van tabel 7.2. De nummers van de crossings zijn gedefinieerd in tabel (7.1).

nr. avoided crossing	$F_k$ [eV/ $a_0$ ]	$F_l$ [eV/ $a_0$ ]	$H_{lk}$ [eV]
①	1.6 $10^{-2}$	1.4 $10^{-3}$	1.4 $10^{-3}$
②	6.7 $10^{-2}$	1.2 $10^{-4}$	2.3 $10^{-2}$
③	4.5 $10^{-2}$	2.5 $10^{-3}$	3.1 $10^{-3}$
④	7.7 $10^{-2}$	1.1 $10^{-3}$	2.2 $10^{-2}$

Tabel 7.5: Berekende gepolariseerde doorsnedes volgens het Landau-Zener model. Tussen haakjes de gepolariseerde doorsnedes volgens uit berekening I van paragraaf 6.1. De in de berekening gebruikte parameters zijn gegeven in tabel (7.3).

overgang $l \leftarrow k$	botsingsenergie [meV]	SEMIKLASSIEK		
		$Q^0$ [Å <sup>2</sup> ]	$Q^1$ [Å <sup>2</sup> ]	$Q^2$ [Å <sup>2</sup> ]
5 $\leftarrow$ 4	84	11 (6.3)	8.9 (7.7)	8.9 (12.1)
4 $\leftarrow$ 5	95	11.1 (14.0)	15.0 (13.7)	-
7 $\leftarrow$ 5	95	5.8 (5.8)	1.8 (1.8)	-
7 $\leftarrow$ 6	152	8.6 (8.4)	5.8 (6.4)	5.6 (5.1)
5 $\leftarrow$ 7	176	4.0 (3.9)	0.54 (0.56)	-
6 $\leftarrow$ 7	176	6.2 (3.4)	10.6 (12.0)	-
7 $\leftarrow$ 4	84	3.2 (2.8)	3.4 (3.1)	1.8 (2.0)
4 $\leftarrow$ 7	176	0.56 (0.70)	2.8 (2.8)	-



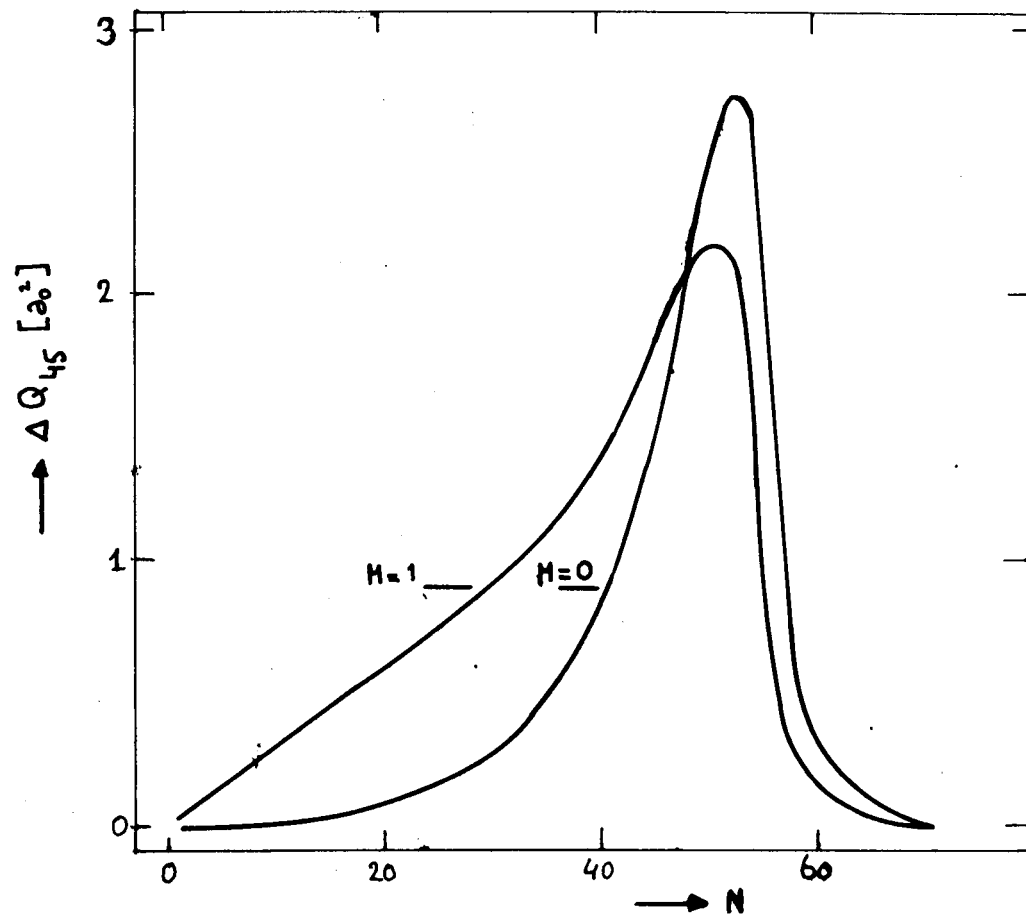
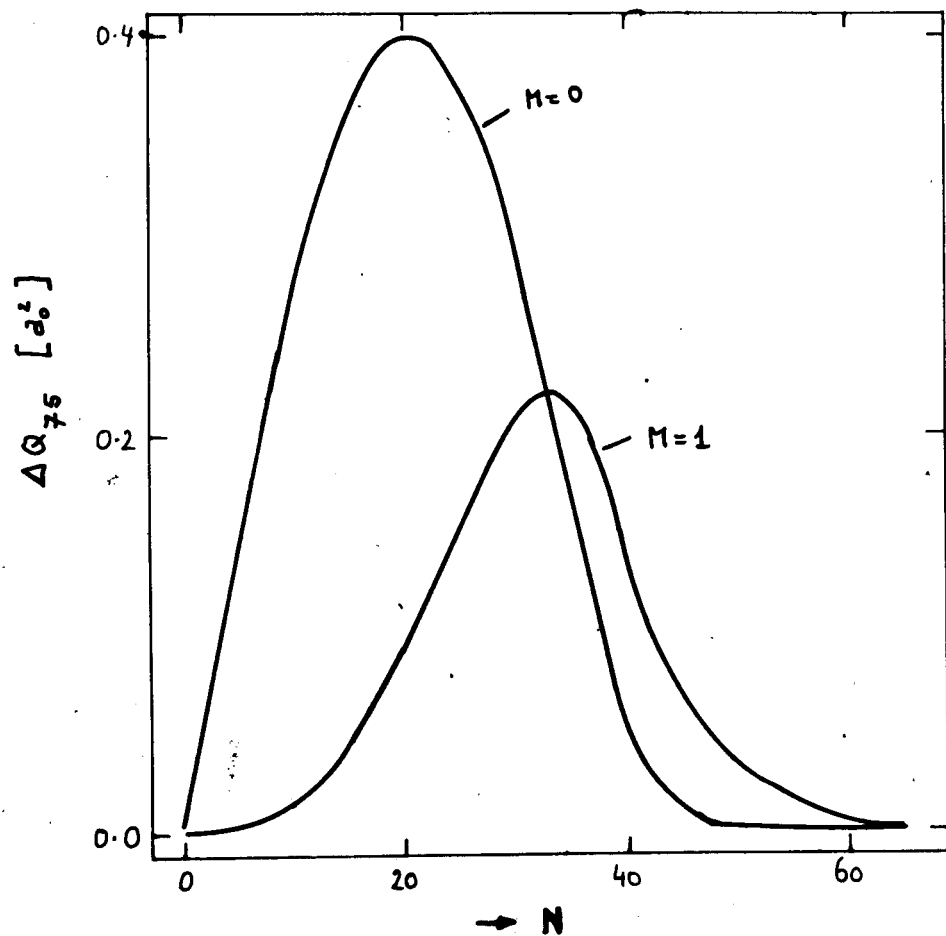


Figuur 7.7: Adiabatische (-) en ("effectieve") diabatische potentiaalkrommen van curve-crossing (4), gebruikt bij de berekening van gepolariseerde doorsnedes. De hellingen  $F_l$  en  $F_k$  en het koppelingsmatrixelement zijn gegeven in tabel (7.4).

In figuur (7.8) geven wij verder de bijdrage per N-waarde aan de doorsnedes  $Q_{45}$  en  $Q_{75}$ . Wanneer wij deze vergelijken met de figuren (6.3), waar equivalente bijdragen zijn uitgezet voor de volledige quantummechanische berekening, dan zien wij (wanneer wij op het oog de oscillaties in de figuren (6.3) uitmiddelen) dat er ook hier een kwalitatief goede overeenstemming is voor wat betreft het algemene gedrag en de ligging van het maximum.

Wij vinden echter een veel geringere bijdrage aan  $Q_{45}$  in het klassiek verboden gebied ( $N > 50$ ) dan in de quantummechanische berekening (vgl. figuur 6.3.c).

Het tot stand komen van oriëntatie-effecten kunnen wij dus grotendeels beschrijven met behulp van selectief bij één  $\mathcal{N}$  optredende avoided crossings in combinatie met een geometrische draaiing van de internucleaire as. Het is dan ook begrijpelijk waarom de overgang  $\{\alpha\}_4 \leftarrow \{\alpha\}_7$  wél een duidelijk oriëntatie-effect toont, en (bijvoorbeeld) de overgang  $\{\alpha\}_4 \leftarrow \{\alpha\}_5$  niet. Aan de doorsnede  $Q_{47}^M$  vinden wij immers alleen belangrijke bijdragen voor impactparameters kleiner dan de crossing-radius. Bij deze impactparameters is de asymptotische waarde van  $\Omega_k = |M_k|$  nog grotendeels behouden wanneer



Figuur 7.8: Bijdragen per  $N$ -waarde aan gepolariseerde werkzame doorsnedes  $Q_{75}$  en  $Q_{45}$ , volgend uit het Landau-Zener model. Zij vertonen qua algemeen gedrag en de ligging van het maximum een duidelijke overeenkomst met de quantummechanische doorsnedes (vgl. fig. 6.3c en f).

de crossing radius wordt bereikt, zodat een groot oriëntatie-effect moet worden verwacht. Voor de overgang  $\{ \alpha_4 \leftarrow \alpha_5 \}$  geldt daarentegen dat deze alleen bij impactparameters vergelijkbaar met  $R_c$  waarschijnlijk is. Bij het bereiken van de crossing-radius in de internucleaire as dan inmiddels zover verdraaid t.o.v. het elektronisch impulsmoment, dat alle  $\Omega$ -toestanden bezet zijn. Het gevolg hiervan is dat alle asymptotische oriëntaties van het elektronisch impulsmoment dezelfde doorsnede opleveren.

## 8. CONCLUSIES

Metingen aan intramultiplet mixing van  $\text{Ne}^{**}(2p^5 3p)$  bij botsingen met helium-atomen laten zien dat voor inelastische overgangen tussen de toestanden  $\{\alpha\}_4$ ,  $\{\alpha\}_5$ ,  $\{\alpha\}_6$  en  $\{\alpha\}_7$  de werkzame doorsnedes zowel qua grootte als ook qua oriëntatie-effect sterk kunnen verschillen.

Op deze punten is er een goede overeenstemming met de uitkomsten van quantummechanische gekoppelde kanalen berekeningen. Voor een goede beschrijving van onze metingen is het voldoende gebruik te maken van de potentialen gegeven voor internucleaire afstanden  $R > 4.5a_0$  van Hennecart.

Deze potentialen leiden tot avoided crossings tussen de moleculaire eigenwaardekrommen van het botsende systeem. De eigenwaardekrommen vallen voor  $\Omega = 0$  uiteen in twee (reflectie-)symmetrieklassen. Ten gevolge daarvan worden voor  $\Omega = 0$  andere adiabatische toestanden verbonden door avoided crossings dan voor  $\Omega = 1$ .

Hiervan uitgaande zijn inelastische overgangen tussen de  $\text{Ne}^{**}$ -toestanden  $\{\alpha\}_4$ ,  $\{\alpha\}_5$ ,  $\{\alpha\}_6$  en  $\{\alpha\}_7$  vrijwel volledig te beschrijven met semiklassieke theorieën. Met eenvoudige Landau-Zener modellen hebben wij laten zien dat de grootte van inelastische werkzame doorsnedes wordt bepaald door de aanwezigheid van avoided crossings. Oriëntatie-effecten zijn te wijten aan selectief bij één waarde van  $\Omega$  optredende avoided crossings. De grootte van oriëntatie-effecten kan dan niet alleen kwalitatief maar ook kwantitatief worden begrepen uit de sterkte van de radiële koppeling ter plaatse van de crossing radius en de door de deeltjesbeweging veroorzaakte draaiing van de internucleaire as ten opzichte van het elektronisch impulsmoment.

Effecten van "locking", waarbij het elektronisch impulsmoment mee gaat draaien met de internucleaire as, zijn in dit systeem niet belangrijk.

De invoergegevens van de in hoofdstuk 7 gebruikte modellen kunnen worden geijkt m.b.v. quantummechanische berekeningen. Wanneer de numerieke nauwkeurigheid wordt opgevoerd, is het mogelijk ook bij andere botsings-energieën dan de tot nu toe gebruikelijke, inelastische werkzame doorsnedes te voorspellen. Hiermee kan een enorme rekentijdbesparing worden bereikt. Dit zal in het bijzonder van belang zijn wanneer de "Minibundel I"-opstelling wordt voorzien van een plasmabron [THE81]. Bij

de hiermee haalbare botsingsenergieën ( $E_0 \leq 2$  eV) wordt een volledige quantummechanische berekening zeer kostbaar.

De eenvoud waarmee tenslotte in hoofdstuk 7 het proces van intramultiplet mixing is beschreven, biedt goede hoop dat ook het systeem  $\text{Ne}^{**} + \text{Ne}$  (afgezien van symmetrie-effecten) met eenvoudige theorieën kan worden begrepen. Voor dit systeem worden momenteel geschikte wisselwerkingspotentialen geconstrueerd [B0086]. Ook moet het mogelijk zijn meer  $\text{Ne}^{**}$ -toestanden dan de vier van dit verslag in de berekening te betrekken. De diepe "putten" in de adiabatische eigenwaardekrommen van appendix B zijn misschien toe te schrijven aan Demkov-Coupling [NIK68]. Zij zijn immers veel minder geprononceerd aanwezig in de diagonaalelementen van  $V_I$  op de atomaire basis (vergelijk figuur 7.2) en ontstaan daarom door koppeling tussen atomaire  $\text{Ne}^{**}$ -toestanden. Ook Demkov-coupling is semi-klassiek te beschrijven.

Ten aanzien van het experiment tenslotte moeten wij opmerken dat er behoefte is aan een betere beschrijving van het laser excitatieproces wanneer  $\text{Ne}^{**} \{^2k, j_k = 2\}$ -toestanden worden aangemaakt vanuit het metastabiele  $\text{Ne}^*(^3P_2)$ -nivo. Bovendien moet de invloed van een eventueel aanwezig aardmagneetveld worden geëlimineerd.

Het niet volledig reproduceerbaar zijn van de uitlijning van de laser speelt in feite al niet meer. De in paragraaf 6.3 vermelde quadrantdiodes zijn op dit moment al operationeel.

REFERENTIES

- [BEI77] H.C.W. Beijerinck,  
Collegedictaat "Molecuulbotsingen", VDF/NO 77-14
- [BEI81] H.C.W. Beijerinck en N.F. Verster  
Physica 111C (1981) 327
- [BEI83] J.P.M. Beijers  
afstudeerverslag VDF/NO 83-09
- [BEU86] F. v.d. Beucken  
stageverslag VDF/NO 86-03
- [BOO86] W. Boom  
stageverslag, verschijnt in 1986
- [CHI79] M.S. Child  
in "Atom-Molecule Collision Theory", Plenum, New York (1979)
- [DAL60] A. Dalgarno en A.E. Kingston  
Proc. Roy. Soc. A259 (1960) 424
- [DRI83] J.P.J. Driessen  
stageverslag VDF/NO 83-14
- [DRI85] J.P.J. Driessen  
afstudeerverslag VDF/NO 85-10
- [FEN76] S. Feneuille, M.Klapisch, E. Koenig en S. Liberman  
Physica 48 (1970) 589
- [HAB82] H. Haberland, W. Konz en P. Oesterlin  
J. Phys. B: Att. Mol. Phys. 15 (1982) 2969
- [HEN82] D. Hennecart  
proefschrift, Université de Caen, 1982
- [HER78] I. Dabrowski en G. Herzberg  
J. Mol. Spectr. 73 (1978) 183
- [HOE86] M. van Hoek  
Afstudeerverslag verschijnt in 1986
- [KRU85] C.P.J.W. van Kruysdijk  
afstudeerverslag VDF=NO 85-04
- [MAR85] J.F.M. Martens  
afstudeerverslag VDF/NO 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",  
U.S. Government Printing office, Washington (1966)
- [NIK68] E.E. Nikitin  
in "Chemische Elementarprozesse" Springer, Berlijn (1968)
- [PAR75] "PAR1120- Operating and Service Manual", Princeton Applied  
Research (1975)
- [RUY84] W.M.J. Ruyten  
afstudeerverslag VDF/NO 84-06
- [RUY 84-2] W.M.J. Ruyten  
Intern rapport VDF/NO 84-02
- [SCH86] J.H.M. Schonenberg  
afstudeerverslag VDF/NO 86-01
- [SEN86] H. Senhorst  
afstudeerverslag, verschijnt in 1986
- [THE82] P.G.A. Theuws, H.C.W. Beijerinck en N.F. Verster  
J. Phys. E: Sci. Instr. 15 (1982) 573
- [VER82] M.J. Verheijen, H.C.W. Beijerinck en N.F. Verster  
J. Phys. E: Sci. Instr. 15 (1982) 1198
- [VEU86] W.J.T. Veugelers  
stageverslag VDF/NO 86-03
- [VLI85] E.J.W. van Vliembergen  
afstudeerverslag VDF/NO 81-17
- [VLU81] J.C. Vlugter  
stageverslag VDF/NO 81-07

Ik wil iedereen bedanken die mij tijdens mijn studie heeft gesteund.  
Naast mijn afstudeerbegeleiders vallen daar natuurlijk mijn ouders onder.  
Zonder mijn moeder had ik het deze laatste maanden niet gered.

APPENDIX A1: AFLEIDING VAN DE DUBBELGEPOLARISEERDE DOORSNEDE <sup>MEMK</sup> <sub>REK</sub>

De in- en uitlopende bolgolven van paragraaf 2.4.2 hangen samen met N-diabatische kanaalfuncties volgens [BEI82]

$$\frac{1}{R} I_{aa} |\varphi_a\rangle \underset{R \rightarrow \infty}{\sim} \frac{e^{-(i(k_k R - N\pi/2))}}{(2ik_k)^{1/2} R} |\pi\alpha_k J_k N_k P M_P\rangle \quad (A.1.a)$$

$$\frac{1}{R} O_{aa} |\varphi_a\rangle \underset{R \rightarrow \infty}{\sim} \frac{e^{+(i(k_k R - N\pi/2))}}{(2ik_k)^{1/2} R} |\pi\alpha_k J_k N_k P M_P\rangle \quad (A.1.b)$$

De vlakke golf  $\frac{1}{R} C_a [I_{aa} - O_{aa}]$  van uitdrukking (2.22) is volgens [DRI85] asymptotisch gelijk aan

$$|\alpha_k J_k M_k\rangle e^{-i\vec{k}_k \cdot \vec{R}} \underset{R \rightarrow \infty}{\sim} \sum_P \sum_{M_P} \sum_{N_k} (-)^{J_k - M_k} (i)^{N_k} \left\{ 4\pi \frac{2P+1}{2ik_k} \right\}^{1/2} \times$$

$$\times (J_k M_k P M_P | N_k 0) |\pi\alpha_k J_k N_k P M_P\rangle$$

$$\times \left[ \frac{e^{i(k_k R - N\frac{\pi}{2})}}{(2ik_k)^{1/2} R} - \frac{e^{-i(k_k R - N_k \frac{\pi}{2})}}{(2ik_k)^{1/2} R} \right] \quad (A.2)$$

Met vergelijking (A.1) volgt dat de coëfficiënten  $C_a$  moeten zijn:

$$C_a = C_{\pi\alpha_k J_k N_k P M_P} = (-)^{J_k - M_k + 1} \times$$

$$\times (i)^{N_k} \left\{ 4\pi \frac{2P+1}{2ik_k} \right\}^{1/2} (J_k M_k P M_P | N_k 0) \quad (A.3)$$

Deze coëfficiënten moeten wij invullen in vergelijking (2.2b) om de verstrooiingsamplitude  $f_{\ell k}^{M_\ell M_k}$  te vinden. De uitlopende bolgolven worden hierbij gegeven door een uitdrukking analoog aan (A.1.a)

$$\frac{1}{R} O_{bb} |\varphi_b\rangle = \frac{e^{+i(k_\ell R - N_\ell \pi/2)}}{(2ik_\ell)^{1/2} R} |\pi\alpha_\ell J_\ell N_\ell P M_P\rangle \quad (A.4)$$

zodat wij vinden



$$\begin{aligned}
 f_{\ell k}^{M_\ell M_k}(\hat{R}) &= \sum_{P M_P} \sum_{N_\ell N_k} (-)^{J_k - M_k + 1} (i)^{N_k} \left\{ 4\pi \frac{2P+1}{2i k_k} \right\}^{1/2} (J_k M_k P - M_k | N_k 0) \times \\
 &\times \langle \alpha_\ell J_\ell M_\ell | \pi \alpha_\ell J_\ell N_\ell P M_P \rangle \left\{ \frac{e^{i N_\ell \pi/2}}{(2i k_\ell)^{1/2}} \right\} \times \\
 &\times \left\{ \langle \pi \alpha_\ell J_\ell N_\ell P M_P | S | \pi \alpha_k J_k N_k P M_P \rangle - \delta_{\ell k} \delta_{N_\ell N_k} \right\} \quad (A.5)
 \end{aligned}$$

Ontkoppeling van  $|\pi \alpha_\ell J_\ell N_\ell P M_P\rangle$  volgens (2.10) levert

$$\begin{aligned}
 f_{\ell k}^{M_\ell M_k}(\hat{R}) &= \sum_{P, M_P} \sum_{M_k, N_\ell} (-)^{J_k - M_k + 1} (i)^{M_k + N_\ell - 1} \left\{ \pi \frac{2P+1}{k_k k_\ell} \right\}^{1/2} \\
 &\times (J_k M_k P M_P | N_k 0) (J_\ell M_\ell N_\ell M_{N_\ell} | P M_P) \\
 &\times \left\{ \langle \pi \alpha_\ell J_\ell N_\ell P M_P | S | \pi \alpha_k J_k N_k P M_P \rangle - \delta_{\ell k} \delta_{N_\ell N_k} \right\} \quad (A.6)
 \end{aligned}$$

De integratie  $\iint d\hat{R} \left\{ f_{\ell k}^{M_\ell M_k}(\hat{R}) \right\} \cdot \left\{ f_{\ell k}^{M'_\ell M'_k}(\hat{R}) \right\}^*$  van (2.16) strekt zich alleen uit over de bolfuncties  $|N_\ell M_{N_\ell}\rangle$  en  $|N'_\ell M'_{N'_\ell}\rangle$ .

Hierbij krijgen we volgens [MES81]

$$\iint d\hat{R} Y_{N_\ell M_{N_\ell}}(\hat{R}) Y_{N'_\ell M'_{N'_\ell}}^*(\hat{R}) = \delta_{N_\ell N'_\ell} \delta_{M_{N_\ell} M'_{N'_\ell}} \quad (A.7)$$

De dubbelgepolariseerde doorsnede volgens (2.16) bevat dus slechts eenvoudige sommaties over  $N_\ell$  en  $M_{N_\ell}$ . Verder is de Clebsh-Gordan coëfficiënt  $(J_k M_k P M_P | N_k 0)$  alléén  $\neq 0$  wanneer  $M_P = -M_k$ : sommaties over  $M_P$  kunnen geheel worden weggelaten. De tweede Clebsh-Gordan coëfficiënt wordt dan  $(J_\ell M_\ell N_\ell M_{N_\ell} | P M_k)$ , en deze is alléén  $\neq 0$  wanneer  $M_{N_\ell} = M_\ell - M_k$  zodat bovendien de sommatie over  $M_{N_\ell}$  overbodig is.

Als einduitdrukking voor de dubbelgepolariseerde doorsnede resulteert dan

$$\begin{aligned}
 Q_{lk}^{M_l M_k} &= \frac{k_e}{k_k} \iint d\hat{R} \left\{ f_{lk}^{M_l M_k}(\hat{R}) \right\} \left\{ f_{lk}^{M_l M_k}(\hat{R}) \right\}^* \\
 &= \sum_{N_l} \left[ \sum_P \sum_{N_k} (-)^{J_k - M_k + 1} (i)^{N_k + N_l - 1} \right] \pi \frac{2P+1}{k_k k_l} \left\{ \frac{1}{2} (J_k M_k P - M_k | N_k 0) \right. \\
 &\times (J_l M_l N_l M_l - M_k | P M_k) \left. \right\} \left\langle \pi \alpha_l J_l N_l P M_k | S | \pi \alpha_k J_k N_k P M_k \right\rangle - \delta_{N_l N_k} \delta_{l k} \\
 &\times \left[ \sum_{P'} \sum_{N_k'} (-)^{J_k - M_k + 1} (i)^{N_k' + N_l - 1} \right] \pi \frac{2P'+1}{k_k k_l} \left\{ \frac{1}{2} (J_k M_k P' - M_k | N_k' 0) \right. \\
 &\times (J_l M_l N_l M_l - M_k | P' M_k) \left. \right\} \left\langle \pi \alpha_l J_l N_l P M_k | S | \pi \alpha_k J_k N_k' P' M_k \right\rangle - \delta_{N_l N_k'} \delta_{l k}
 \end{aligned}$$

(A.8)

wat, na omschrijven, gelijk is aan uitdrukking (2.23).

APPENDIX A2: DE DUBBELGEPOLARISEERDE DOORSNEDE IS REËEL

Herschrijf (2.23) tot

$$\begin{aligned}
 \chi_{\ell k}^{M_\ell M_k} &= \frac{\pi}{k^2} \left\{ \sum_{P=P'} + \sum_{P>P'} + \sum_{P<P'} \right\} \sum_{N_\ell N_k N_k'} (i)^{N_k - N_k'} (2P+1)^{1/2} (2P'+1)^{1/2} \times \\
 &\times (J_\ell M_\ell N_\ell M_k - M_\ell | P M_k ) (J_\ell M_\ell N_\ell M_k - M_\ell | P' M_k ) \\
 &\times (J_k M_k P - M_k | N_k 0 ) (J_k M_k P' - M_k | N_k' 0 ) \\
 &\times \left\{ \langle \pi \alpha_\ell J_\ell N_\ell P M_k | S | \pi \alpha_k J_k N_k P M_k \rangle - \delta_{\ell k} \delta_{N_\ell N_k} \right\} \\
 &\times \left\{ \langle \pi \alpha_\ell J_\ell N_\ell P' M_k | S | \pi \alpha_k J_k N_k' P' M_k \rangle - \delta_{\ell k} \delta_{N_\ell N_k'} \right\}^* \quad (A.9)
 \end{aligned}$$

Wanneer we in de som  $\sum_{P<P'}$  zowel  $P$  vervangen door  $P'$  en  $P'$  door  $P$  als ook  $N_k$  door  $N_k'$  en  $N_k'$  door  $N_k$ , dan is direct duidelijk dat de ontstane uitdrukking de complex toegevoegde is van de som  $\sum_{P>P'}$ . Optelling van beide sommen levert dus een reëel getal op.

Nu moet nog worden bewezen dat

$$\begin{aligned}
 &\sum_{P=P'} \sum_{N_\ell N_k N_k'} (i)^{N_k - N_k'} (2P+1) (J_\ell M_\ell N_\ell M_k - M_\ell | P M_k )^2 \times \\
 &\times (J_k M_k P - M_k | N_k 0 ) (J_k M_k P - M_k | N_k' 0 ) \\
 &\times \left\{ \langle \pi \alpha_\ell J_\ell N_\ell P M_k | S | \pi \alpha_k J_k N_k P M_k \rangle - \delta_{\ell k} \delta_{N_\ell N_k} \right\} \\
 &\times \left\{ \langle \pi \alpha_\ell J_\ell N_\ell P M_k | S | \pi \alpha_k J_k N_k' P M_k \rangle - \delta_{\ell k} \delta_{N_\ell N_k'} \right\}^* \quad (A.10)
 \end{aligned}$$

iets reëls oplevert. Hiertoe passen we dezelfde methode toe: herschrijf de sommatie tot

$$\begin{aligned}
 &\left\{ \sum_{N_k=N_k'} + \sum_{N_k>N_k'} + \sum_{N_k<N_k'} \right\} \sum_{P=N_\ell} (i)^{N_k - N_k'} (2P+1) (J_\ell M_\ell N_\ell M_k - M_\ell | P M_k )^2 \times \\
 &\times (J_k M_k P - M_k | N_k 0 ) (J_k M_k P - M_k | N_k' 0 ) \\
 &\times \left\{ \langle \pi \alpha_\ell J_\ell N_\ell P M_k | S | \pi \alpha_k J_k N_k P M_k \rangle - \delta_{\ell k} \delta_{N_\ell N_k} \right\} \\
 &\times \left\{ \langle \pi \alpha_\ell J_\ell N_\ell P M_k | S | \pi \alpha_k J_k N_k' P M_k \rangle - \delta_{\ell k} \delta_{N_\ell N_k'} \right\}^* \quad (A.11)
 \end{aligned}$$

Verwisseling van  $N_k$  en  $N'_k$  bij de som  $\sum_{N_k < N'_k}$  levert nu de complex toegevoegde van de som  $\sum_{N_k > N'_k}$  op. De som  $\sum_{N_k = N'_k}$  wordt

$$\sum_P \sum_{N_l} \sum_{N_k = N'_k} (2P+1) (j_l M_l N_l M_k - M_l | P M_k )^2 (j_k M_k P - M_k | N_k 0 )^2 \times$$

$$\times \left| \langle \pi \alpha_k j_k N_l P M_k | S | \pi \alpha_k j_k N_k P M_k \rangle - \delta_{lk} \delta_{N_l N_k} \right|^2 \quad (A.12)$$

en is dus eveneens reëel. Hiermee is het gestelde bewezen.

APPENDIX A3: BEREKENING VAN MATRIXELEMENTEN  $\langle (l_e l_c) LSJ \mu_J | V_I | (l_e l_c) L' S' J' \mu_J' \rangle$

We splitsen de operator  $V_I$  van 2.5 op in twee operatoren  $V_e$  en  $V_c$  die de electron-He resp. de gat-He wisselwerking beschrijven:

$$V_I = V_e + V_c \quad (A.13)$$

Elke operator ontbinden we in irreducibele tensor operatoren van orde  $k$  met componenten  $R_Q^{(k)}$  t.o.v. de quantisatie-as (i.c. de internucleaire as). De wisselwerkingen met het He zijn cilindrischsymmetrisch om de internucleaire as, zodat alleen  $Q = 0$  componenten bestaan.

Electron-He wisselwerking

Uitgeschreven voor  $V_e$  krijgen we

$$V_e = \sum_k R_{Q=0}^{(k)} \quad (A.14)$$

De basis waarin wordt gewerkt, bestaat uit de electron toestanden  $| l_e \lambda_e = 0, \pm 1 \rangle$ , gat toestanden  $| l_c \lambda_c = 0, \pm 1 \rangle$  en spintoestanden  $| S \Sigma = 0, \pm 1 \rangle$ , gekoppeld volgens het schema  $\vec{l}_e + \vec{l}_c = \vec{L}$ ,  $\vec{L} + \vec{S} = \vec{J}$  tot een  $(l_e l_c) LSJ \mu_J$ -basis.

Voor de matrixelementen van  $R_0^{(k)}$  t.o.v. deze  $(l_e l_c) LSJ \mu_J$ -basis geldt volgens het Wigner-Eckart theorema [MES81], C.84 :

$$\begin{aligned} \langle LSJ \mu_J | R_0^{(k)} | L' S' J' \mu_J' \rangle = \\ (-)^{J-\mu_J} \begin{pmatrix} J & k & J' \\ -\mu_J & 0 & \mu_J' \end{pmatrix} \langle (l_e l_c) LSJ || R^{(k)} || (l_e l_c) L' S' J' \rangle \quad (A.15) \end{aligned}$$

Het Wigner-3J-symbool  $\begin{pmatrix} J & k & J' \\ -\mu_J & 0 & \mu_J' \end{pmatrix}$  is alleen  $\neq 0$  indien

$$\left\{ \begin{array}{l} \mu_J = \mu_J' \\ |J - J'| \leq k \leq J + J' \end{array} \right. \quad (A.16)$$

De matrixelementen van  $R_0^{(k)}$  (dus ook van  $V_e$ ) zijn diagonaal in  $\mu_J$ .

Afsplitsing spin-deel

Het gereduceerde matrixelement  $\langle (\ell_e \ell_c) L S J \| R^{(k)} \| (\ell_e \ell_c) L' S' J' \rangle$  kunnen we verder uitwerken door  $R_0^{(k)}$  te schrijven als het direkt produkt van een eenheidsoperator  $u_s \equiv 1$ , die alleen op de spincoördinaten werkt (spin is niet van belang voor de electron-He wisselwerking) meteen operator  $T_0^{(k)}$  die alleen op gat- en electronencoördinaten werkt:

$$R_0^{(k)} = T_0^{(k)} \otimes u_s \quad (\text{A.17})$$

In dat geval geldt [MES81, C.90]:

$$\begin{aligned} \langle (\ell_e \ell_c) L S J \| R_0^{(k)} \| (\ell_e \ell_c) L' S' J' \rangle &= (-)^{J'+L+S+K} (2J+1)^{1/2} (2J'+1)^{1/2} \times \\ &\times \left\{ \begin{matrix} L & k & L' \\ J' & s & J \end{matrix} \right\} \delta_{SS'} \langle (\ell_e \ell_c) L \| T^{(k)} \| (\ell_e \ell_c) L' \rangle \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

De matrixelementen van  $V_e$  zijn dus ook diagonaal in  $S$ . Voor het Wigner-6J-symbool  $\left\{ \begin{matrix} L & k & L' \\ J' & s & J \end{matrix} \right\}$  gelden de selectieregels

$$\begin{aligned} |L-L'| &\leq k \leq L+L' \\ |L-S| &\leq J \leq L+S \\ |L-L'| &\leq s \leq L+L' \\ |L'-S| &\leq J' \leq L'+S \end{aligned} \quad (\text{A.19})$$

In ons geval geldt  $0 \leq L \leq 1$ ,  $0 \leq L' \leq 1$ , dus  $0 \leq k \leq 2$ : alleen de componenten van  $V_e$  van orde 0, 1 en 2 zijn van belang.

Afsplitsing gat-deel

Ook de gereduceerde matrixelementen  $\langle \ell_e \ell_c L \| T^{(k)} \| \ell_e \ell_c L' \rangle$  kunnen we verder uitwerken, n.l. door  $T_0^{(k)}$  opnieuw te schrijven als het direkt produkt van een eenheidsoperator  $u_c$ , die alleen op de gat-coördinaten werkt (de electron-He wisselwerking hangt niet van de gat-coördinaten af) met een operator  $\mathcal{T}_0^{(k)}$ , die alleen op de electronencoördinaten werkt:

$$T_0^{(k)} = \mathcal{T}_0^{(k)} \otimes u_c \quad (u_c \equiv 1) \quad (\text{A.20})$$

Nogmaals toepassen van de relatie C.89 van [MES81] levert nu

$$\begin{aligned} \langle \lambda_e \ell_e L \parallel T^{(k)} \parallel \lambda_e \ell_e L \rangle = \\ (-)^{L'+\ell_e+\ell_c+k} (2L+1)^{1/2} (2L'+1)^{1/2} \times \\ \times \left\{ \begin{array}{c} \ell_e \quad k \quad \ell_e \\ L' \quad \ell_e \quad L \end{array} \right\} \langle \ell_e \parallel T^{(k)} \parallel \ell_e \rangle \end{aligned} \quad (\text{A.21})$$

waarin we in kunnen vullen  $\ell_e = \ell_c = 1, \quad 0 \leq k \leq 2$ .

### Berekening electron-deel

De matrixelementen  $\langle \ell_e \parallel T^{(k)} \parallel \ell_e \rangle$  zijn uit te drukken in de in §2.5 gedefinieerde  $V_\sigma^e$  en  $V_\pi^e$ . Opnieuw via het Wigner-Eckart theorema geldt:

$$\begin{aligned} \langle \ell_e = 1 \quad \lambda_e \mid \tilde{T}_0^{(k)} \mid \ell_e = 1 \quad \lambda_e' \rangle = \\ = (-)^{\ell_e - \lambda_e} \langle \ell_e \parallel T^{(k)} \parallel \ell_e \rangle \begin{pmatrix} \ell_e & k & \ell_e \\ -\lambda_e & 0 & \lambda_e \end{pmatrix} \delta_{\lambda_e \lambda_e'} \quad (\text{A.22}) \\ = \frac{1}{(2\ell_e+1)^{1/2}} (-)^{2k} (\ell_e \quad \lambda_e \quad k \quad 0 \mid \ell_e \quad \lambda_e) \langle \ell_e \parallel T^{(k)} \parallel \ell_e \rangle \delta_{\lambda_e \lambda_e'} \end{aligned}$$

Met behulp van [MES81], C.12 en C.27 is uit te rekenen dat dan:

$$\begin{aligned} (k=0): \quad \langle \ell_e \quad \lambda_e = 0 \mid T_0^{(0)} \mid \ell_e \quad \lambda_e = 0 \rangle &= \frac{1}{\sqrt{3}} \langle \ell_e \parallel T^{(0)} \parallel \ell_e \rangle \\ \langle \ell_e \quad \lambda_e = \pm 1 \mid T_0^{(0)} \mid \ell_e \quad \lambda_e = \pm 1 \rangle &= \frac{1}{\sqrt{3}} \langle \ell_e \parallel T^{(0)} \parallel \ell_e \rangle \end{aligned} \quad (\text{A.23a})$$

$$\begin{aligned} (k=1): \quad \langle \ell_e \quad \lambda_e = 0 \mid T^{(1)} \mid \ell_e \quad \lambda_e = 0 \rangle &= 0 \\ \langle \ell_e \quad \lambda_e = \pm 1 \mid T^{(1)} \mid \ell_e \quad \lambda_e = \pm 1 \rangle &= \pm \sqrt{\frac{1}{6}} \langle \ell_e \parallel T^{(1)} \parallel \ell_e \rangle \end{aligned} \quad (\text{A.23b})$$

$$\begin{aligned} (k=2): \quad \langle \ell_e \quad \lambda_e = 0 \mid T_0^{(2)} \mid \ell_e \quad \lambda_e = 0 \rangle &= -\sqrt{\frac{2}{15}} \langle \ell_e \parallel T^{(2)} \parallel \ell_e \rangle \\ \langle \ell_e \quad \lambda_e = \pm 1 \mid T_0^{(2)} \mid \ell_e \quad \lambda_e = \pm 1 \rangle &= \frac{1}{\sqrt{30}} \langle \ell_e \parallel T^{(2)} \parallel \ell_e \rangle \end{aligned} \quad (\text{A.23c})$$

en dus

$$V_{\sigma}^e = \langle \ell_e \lambda_e = 0 | V_e | \ell_e \lambda_e = 0 \rangle = \sum_{k=0}^2 \langle \ell_e \lambda_e = 0 | J_0^{(k)} | \ell_e \lambda_e = 0 \rangle =$$

$$= \frac{1}{\sqrt{3}} \langle \ell_e || J^{(0)} || \ell_e \rangle - \sqrt{\frac{2}{15}} \langle \ell_e || J^{(2)} || \ell_e \rangle \quad (\text{A.24a})$$

$$V_{\pi}^e = \langle \ell_e \lambda_e = \pm 1 | V_e | \ell_e \lambda_e = \pm 1 \rangle$$

$$= \sum_{k=0}^2 \langle \ell_e \lambda_e = \pm 1 | J_0^{(k)} | \ell_e \lambda_e = \pm 1 \rangle \quad (\text{A.24b})$$

$$= \frac{1}{\sqrt{3}} \langle \ell_e || J^{(0)} || \ell_e \rangle + \frac{1}{\sqrt{30}} \langle \ell_e || J^{(2)} || \ell_e \rangle \pm \frac{1}{\sqrt{6}} \langle \ell_e || J^{(1)} || \ell_e \rangle.$$

Wanneer we aannemen dat  $V_{\pi}^e$  niet van het teken van  $\lambda_e$  afhangt, dan moet gelden (c.f. A.24)

$$\langle \ell_e || J^{(1)} || \ell_e \rangle = 0 \quad (\text{A.25})$$

Uit (A.24) en (A.25) samen volgt

$$\langle \ell_e || J^{(2)} || \ell_e \rangle = \sqrt{\frac{10}{3}} (V_{\pi}^e - V_{\sigma}^e) \quad (\text{A.26a})$$

$$\langle \ell_e || J^{(0)} || \ell_e \rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} (V_{\sigma}^e + 2V_{\pi}^e) \quad (\text{A.26b})$$

Bij gebruik van alle tot nu toe afgeleide relaties vinden we voor de matricelementen van  $V_e$ : (A.14, A.15, A.18, A.21, A.26)

$$\langle (\ell_e \ell_c) L S J \mu_J | V_e | (\ell_e \ell_c) L' S' J' \mu_J' \rangle = \delta_{SS'} \delta_{\mu_J \mu_J'} (-1)^{L+L'+J+J'+S-\mu_J} \times$$

$$\times (2J+1)^{1/2} (2J'+1)^{1/2}$$

$$\times \left[ \begin{pmatrix} J & 0 & J' \\ -\mu_J & 0 & \mu_J' \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} 1 & 0 & 1 \\ L' & 1 & L \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} L & 0 & L' \\ J' & S & J \end{Bmatrix} \frac{1}{\sqrt{3}} (V_{\sigma}^e + 2V_{\pi}^e) + \right.$$

$$\left. + \begin{pmatrix} J & 2 & J' \\ -\mu_J & 0 & \mu_J' \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} 1 & 2 & 1 \\ L' & 1 & L \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} L & 2 & L' \\ J' & S & J \end{Bmatrix} \sqrt{\frac{10}{3}} (V_{\pi}^e - V_{\sigma}^e) \right] \quad (\text{A.27})$$



Met behulp van de relaties (C.37) en (ii) van pag. 1058 van [MES81] is nog eenvoudig af te leiden dat

$$\begin{pmatrix} J & 0 & J' \\ -\mu_J & 0 & \mu_{J'} \end{pmatrix} \left\{ \begin{matrix} 1 & 0 & 1 \\ L' & 1 & L \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} L & 0 & L' \\ J' & 1 & J \end{matrix} \right\} = \frac{(-)^{2L+2J+S-\mu_J} \delta_{LL'} \delta_{JJ'}}{\{3 \cdot (2L+1)^2 (2J+1)\}^{1/2}} \quad (\text{A.28})$$

zodat de complete uitdrukking wordt

$$\begin{aligned} & \langle (l_e l_c) L S J \mu_J | V_e | (l_e l_c) L' S' J' \mu_{J'} \rangle = \\ & = \delta_{JJ'} \delta_{SS'} \delta_{LL'} \delta_{\mu_J \mu_{J'}} \frac{1}{3} (V_{\sigma, e} + 2 V_{\pi, e}) + \\ & + \delta_{SS'} \delta_{\mu_J \mu_{J'}} (-)^{J+J'+L+L'+S-\mu_J} \{(2J+1)(2J'+1)(2L+1)(2L'+1)\}^{1/2} \times \\ & \times \begin{pmatrix} J & 2 & J' \\ -\mu_J & 0 & \mu_{J'} \end{pmatrix} \left\{ \begin{matrix} 1 & 2 & 1 \\ L' & 1 & L \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} L & 2 & L' \\ J' & 1 & J \end{matrix} \right\} \sqrt{\frac{10}{3}} (V_{\pi}^e - V_{\sigma}^e) \end{aligned} \quad (\text{A.29})$$

### Gat-wisselwerking

De berekening voor de gat-wisselwerking  $V_c$  verloopt geheel analoog. Slechts één stap is anders: in (A.20) moeten we de rollen van  $\mathcal{T}_0^{(k)}$  en  $u_e$  omdraaien.

De operator  $T_0^{(k)}$  moet nu worden opgesplitst in een eenheidsoperator  $u_e \equiv 1$  die op de electroncoördinaten werkt, en een operator  $\mathcal{T}_0^{(k)}$  die op de gat-coördinaten werkt volgens (c.f. A.20)

$$T_0^{(k)} = u_e \otimes \mathcal{T}_0^{(k)} \quad (\text{A.30})$$

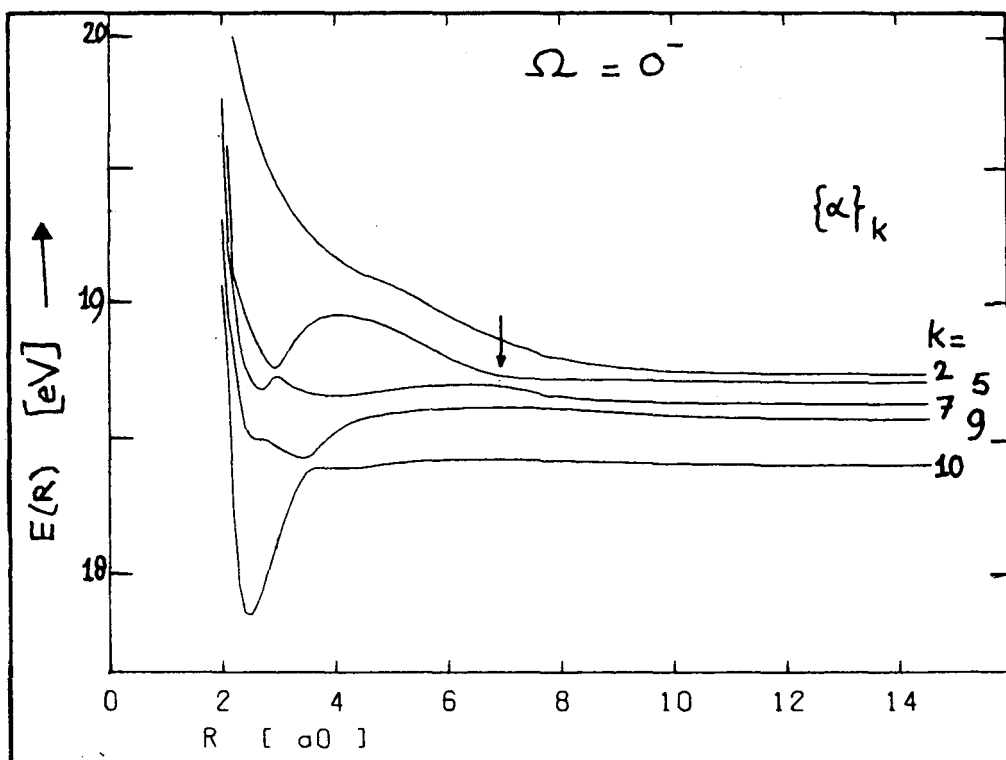
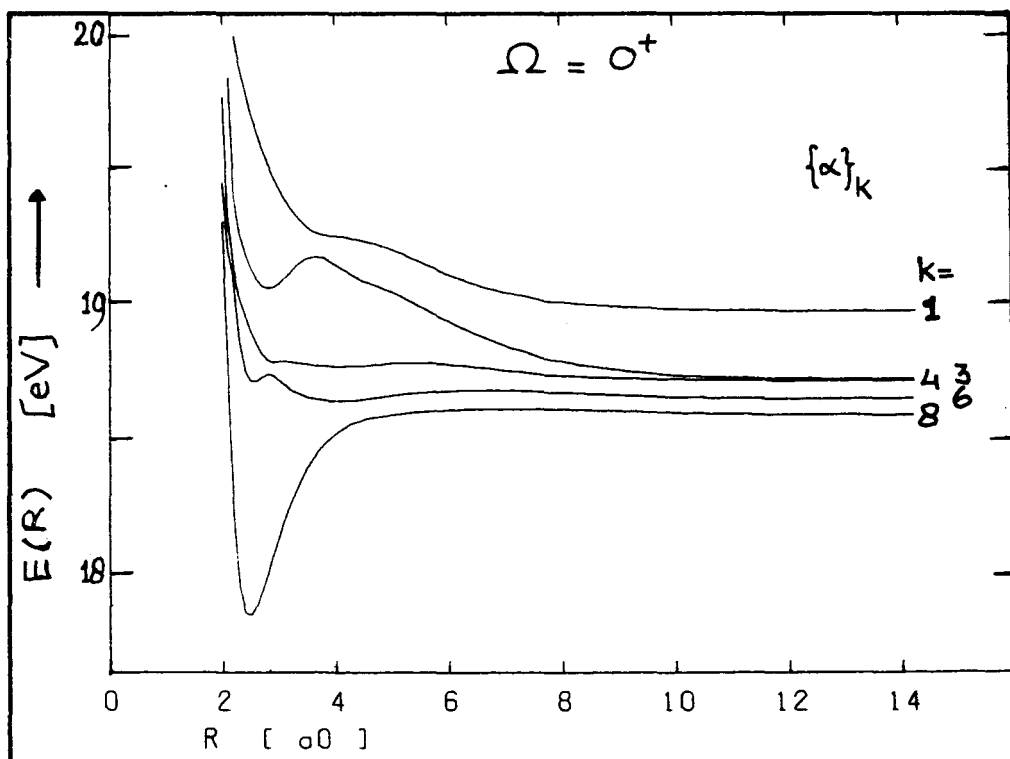
Vergelijking van de relaties (C.89) en (C.90) van [MES81] laat zien dat we voor het gat de formules voor het electron zo kunnen overnemen, wanneer we  $l_e$  door  $l_c$  vervangen, en bovendien in (A.21) de vervanging maken

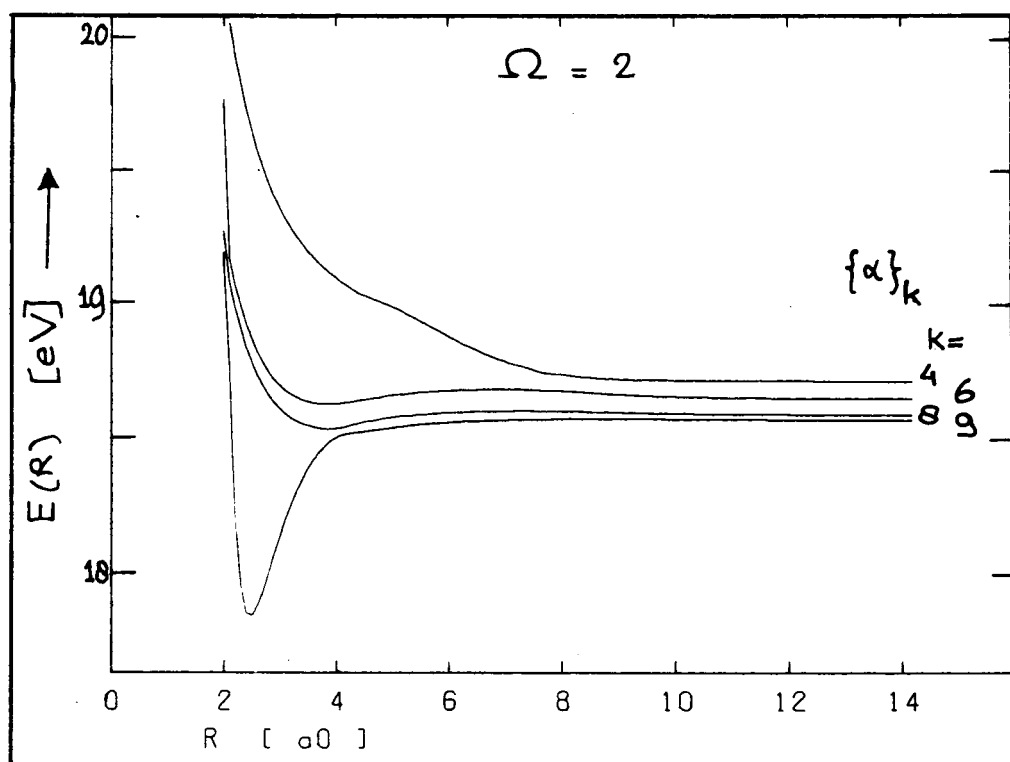
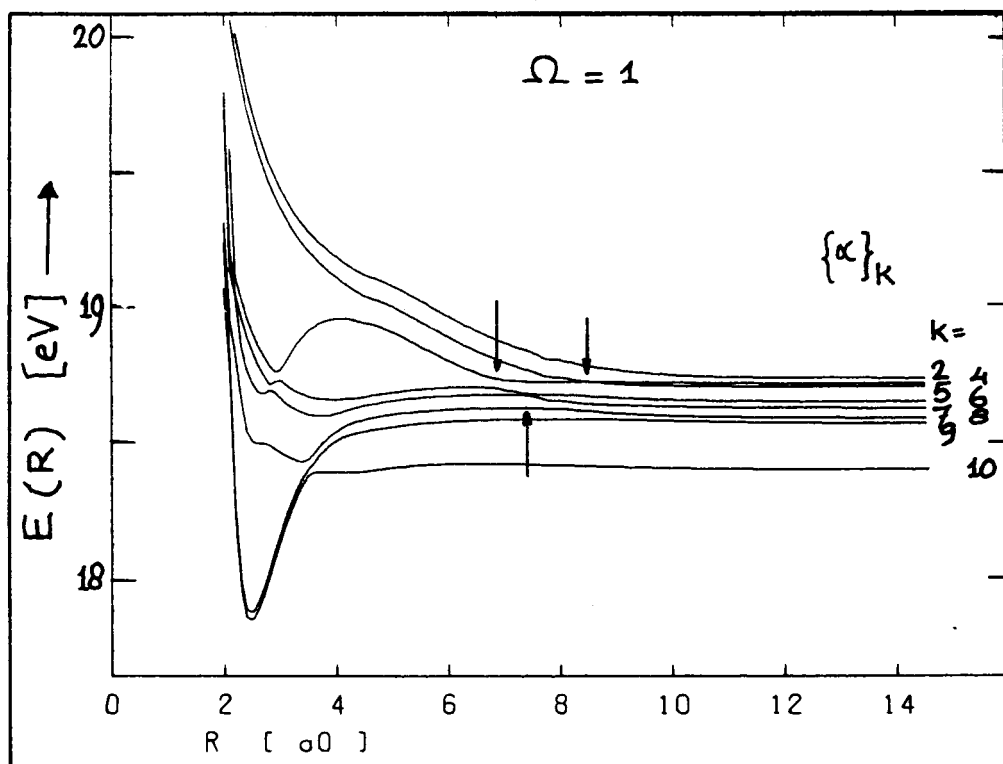
$$(-)^{L'+l_e+l_c+K} \rightarrow (-)^{L+l_e+l_c+K} \quad (\text{A.31})$$

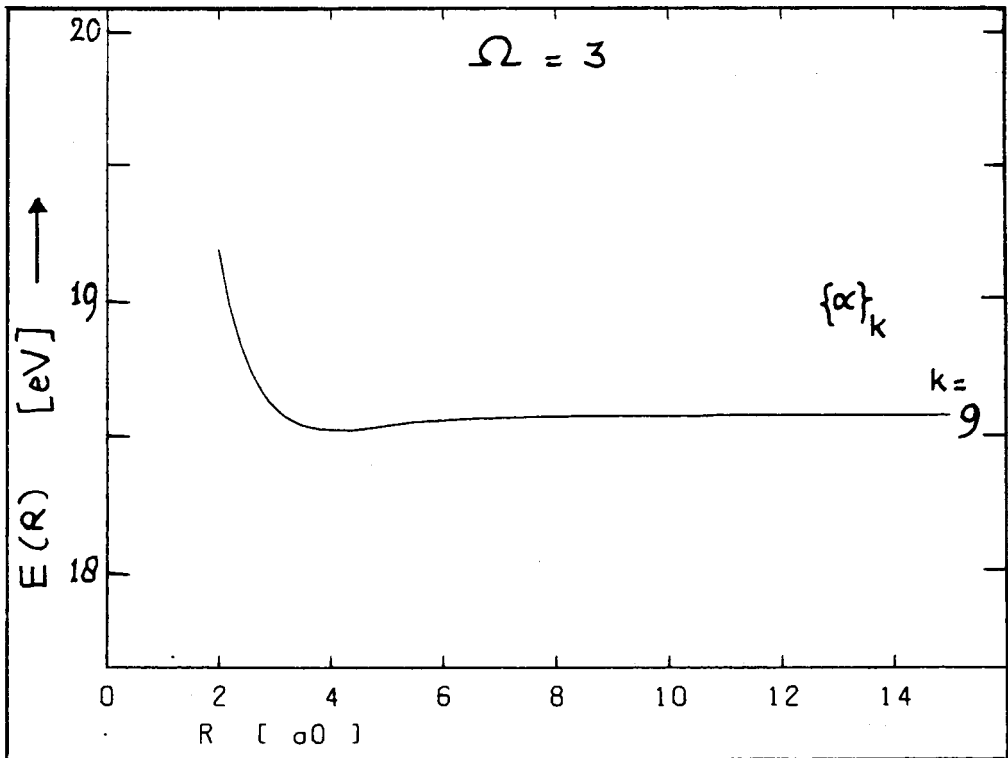
Wanneer we bedenken dat  $\ell_2 = \ell'_2 = 1$ , dan houdt dit in dat de uitdrukking (A.29) voor het electron ook geldig is voor de gatwisselwerking, mits we een extra factor  $(-)^{\ell_2 + \ell'_2}$  meenemen. Hiermee zijn we tenslotte aangeland bij formule (2.42).

APPENDIX B: ADIABATISCHE POTENTIALKROMMEN

In onderstaande figuren zijn de adiabatische potentiaalkrommen van het systeem  $\text{Ne}^{**} + \text{He}$  geschetst. Zij werden berekend gebruikmakend van  $V_6^e$ -potentiaal B (zie tabel 2.2).







APPENDIX C: HET MODEL BEIJERS

In een studie van Beijers [BEI 82] wordt voor exotherme inelastische  $\{a\}k \leftarrow \{a\}l$  overgangen bij wijze van hypothese aangenomen dat de werkzame doorsnedes met de botsingsenergie  $E_0$  variëren volgens

$$Q_{\text{elk}} \sim E_0^{1/2} \quad (\text{C.1})$$

geldig voor  $E_0 \lesssim 35 \cdot (E_{\text{at}}^k - E_{\text{at}}^l)$

Wij kunnen uit een vergelijking tussen de berekeningen I en IV de geldigheid van dit model testen. In tabel (C.1) zijn de ongepolariseerde doorsnedes en botsingsenergieën van de berekeningen I en IV verzameld voor de exotherme overgangen uit de subset onder beschouwing.

Tabel C.1: Ongepolariseerde doorsnedes van exotherme overgangen uit berekening I en IV ter vergelijking met het model Beijers. In de laatste kolommen wordt de toename van werkzame doorsnedes vergeleken met de toename in botsingsenergie (c.f. vgl. (C.1)).

$\{a\}l \leftarrow \{a\}k$	berekening I		berekening IV		$\left\{ \frac{\text{I } E_0}{\text{IV } E_0} \right\}^{1/2}$	$\frac{\text{I } Q_{\text{elk}}}{\text{IV } Q_{\text{elk}}}$
	I $E_0$ [meV]	I $Q_{\text{elk}}$ [ $\text{\AA}^2$ ]	IV $E_0$ [meV]	IV $Q_{\text{elk}}$ [ $\text{\AA}^2$ ]		
5 $\leftarrow$ 4	84	9.4	33	5.2	1.6	1.8
6 $\leftarrow$ 4	84	1.0	33	0.44	1.6	2.3
7 $\leftarrow$ 4	84	2.6	33	1.3	1.6	2.0
6 $\leftarrow$ 5	95	0.72	43	0.12	1.5	6.0
7 $\leftarrow$ 5	95	3.1	43	2.16	1.5	1.4
7 $\leftarrow$ 6	152	6.3	100	5.5	1.2	1.1

Wij zien uit de tabel dat voor sterke overgangen het model Beijers heel redelijke resultaten levert. Dit is echter minder het geval naarmate de doorsnedes kleiner zijn (en dus indirekter tot stand komen).

De mogelijke ongeldigheid van dit model voor kleine doorsnedes heeft consequenties voor het programma dat de experimentele signalen berekent, en waarin een verband tussen  $Q$  en  $E_0$  volgens (C.1) wordt verondersteld. Omdat de botsingsenergie in het botsingscentrum echter slechts langzaam varieert, zal dit pas in tweede orde tot correcties leiden.

APPENDIX D: DRAAIMATRICES VOOR  $J=1$  EN  $J=2$ 

Met de relaties C.65 en C.72 van [MES81] is het niet moeilijk uit te rekenen dat de matrices  $d_{MM'}^{(J)}$  voor  $J=1$  en  $J=2$  de onderstaande vorm hebben.

$$d_{MM'}^{(1)}(\beta) =$$

$M \backslash M'$	-1	0	1
-1	$\xi^2$	$\sqrt{2} \xi \eta$	$\eta^2$
0	$-\sqrt{2} \xi \eta$	$\xi^2 - \eta^2$	$\sqrt{2} \xi \eta$
1	$\eta^2$	$-\sqrt{2} \xi \eta$	$\xi^2$

$$d_{MM'}^{(2)}(\beta) =$$

$M \backslash M'$	-2	-1	0	1	2
-2	$\xi^4$	$2\xi^3\eta$	$\sqrt{6} \xi^2\eta^2$	$2\xi\eta^3$	$\eta^4$
-1	$-2\xi^3\eta$	$\xi^4 - 3\xi^2\eta^2$	$\sqrt{6} \xi\eta(\xi^2 - \eta^2)$	$3\xi^2\eta^2 - \eta^4$	$2\xi\eta^3$
0	$\sqrt{6} \xi^2\eta^2$	$-\sqrt{6} \xi\eta(\xi^2 - \eta^2)$	$\xi^4 - 4\xi^2\eta^2 + \eta^4$	$\sqrt{6} \xi\eta(\xi^2 - \eta^2)$	$\sqrt{6} \xi^2\eta^2$
1	$-2\xi\eta^3$	$3\xi^2\eta^2 - \eta^4$	$-\sqrt{6} \xi\eta(\xi^2 - \eta^2)$	$\xi^4 - 3\xi^2\eta^2$	$2\xi^3\eta$
2	$\eta^4$	$-2\xi\eta^3$	$\sqrt{6} \xi^2\eta^2$	$-2\xi^3\eta$	$\xi^4$

met

$$\xi = \cos(\beta/2)$$

$$\eta = \sin(\beta/2)$$