

САМОВЫСТРАИВАНИЕ МОЛЕКУЛЯРНОГО ПУЧКА

Чайка М. П.

В настоящей работе предлагается интерпретация экспериментов, выполненных Вебером с соавторами в 1984 году [1, 2].

Краткое описание эксперимента. Пучок молекул окиси азота облучался светом перестраиваемого лазера. В основных экспериментах возбуждение происходило на одном единственном сверхтонком переходе. Измерялась разность интенсивностей флюоресценции в двух линейных ортогональных поляризациях. Схема регистрировала сигнал вида

$$S = (I_x - I_y)/(I_x + I_y).$$

Флюоресценция наблюдалась через фильтр, задерживающий рассеянное лазерное излучение и пропускающий все более «красное» излучение. На пучок накладывалось сканируемое магнитное поле или магнитное поле в комбинации с радиочастотным, исследовалась зависимость сигнала S от магнитного поля.

Особенность постановки эксперимента в том, что область возбуждения мала, ее линейные размеры определяются диаметром лазерного пучка и составляют миллиметры. Возбужденное состояние долгоживущее, время жизни имеет порядок 30—50 мкс, поэтому от места возбуждения вдоль пучка тянется светящийся хвост, размеры которого определяются уже сантиметрами. Регистрировалось все излучение пучка.

Главный и неожиданный результат эксперимента — это смена знака сигнала Ханле и сигнала магнитного резонанса при увеличении мощности возбуждающего света, наблюденная на ряде линий. Это демонстрирует рис. 1 (рис. 3 [1]).

В [2] также наблюдался и сигнал Ханле, и магнитный резонанс, но основное внимание уделено другим появившимся резонансам, возникшим в результате некоторого изменения эксперимента: был оставлен только один приемник, и регистрировалось не отношение разности интенсивностей к их сумме, а интенсивность в одной из линейных поляризаций. В такой постановке эксперимента в поле зрения попала зависимость интегральной интенсивности от параметров опыта. Наблюдалась по-прежнему зависимость от приложенного магнитного поля.

Интерпретация результатов экспериментов. Все наблюденные резонансы естественно разделить на резонансы широкие и узкие. Узкие — это эффект Ханле и магнитный резонанс на верхнем излучающем уровне. Ширины широких резонансов соответствуют времени пролета молекул через область возбуждения. В течение этого времени молекулы взаимодействуют с лазерным излучением, т. е. обратное время пролета есть эффективная ширина линии поглощения. Ее естественно связать с нижним уровнем. Можно сказать, что экспериментальная схема, использованная в рассматриваемых работах, такова, что нижние уровни видны широкими, а верхние — узкими.

Появление широких сигналов легко объясняется оптической накачкой, в результате которой образуется провал в распределении молекул в определенном нижнем состоянии по скоростям; пучок молекул не коллимирован, распределение молекул по поперечным составляющим скорости достаточно широкое, чтобы излучение реагировало только с частью молекул. При наложении магнитного поля (или при изменении доплеровского сдвига частоты пробного поля в одном из экспериментов) в игру вступают ненакачанные молекулы и интенсивность флюоресценции повышается. Об оптической накачке говорит и измеренная авторами зависимость интенсивности флюоресценции от интенсивности облучения: на основном используемом переходе при мощности облучения 20 мВт/мм² интенсивность флюоресценции на 20 % ниже ожидаемой при линейной экстраполяции.

Механизм обращения знака узких резонансов (сигнала Ханле и магнитного резонанса) не тривиален. Он связан со столкновениями, которые испытывают

молекулы в камере, до их вылета в пучок. Ось последнего столкновения, в результате которого молекула вылетает через диафрагму, преимущественно направлена вдоль пучка. Иными словами, пучок образован ансамблем атомов, испытавших направленные, т. е. анизотропные, столкновения. А анизотропные столкновения могут вызвать выстраивание (например, [3]), и по законам симметрии ось выстраивания должна быть направлена вдоль пучка молекул. Эта модель, т. е. самовыстраивание молекулярного пучка, объясняет все экспериментальные данные [1, 2], касающиеся узких резонансов.

Если пучок выстроен, то могут конкурировать два процесса: наведение выстраивания возбужденного состояния лазерным полем и передача выстраивания нижнего состояния верхнему тем же лазерным полем. Для оценки этой конкуренции были проведены расчеты на примере перехода, нижний уровень которого имеет квантовое число углового момента $F=7/2$, а верхний — $5/2$ (линия 1 [1]).

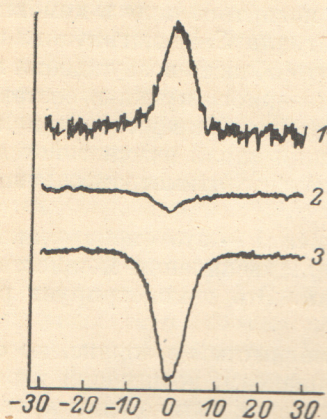


Рис. 1. Сигнал Ханле при разных интенсивностях лазерного облучения: 1 — 1, 2 — 10, 3 — 40 мВт/мм².

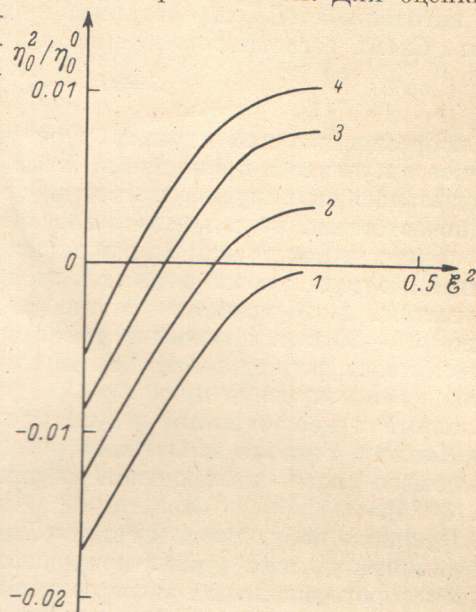


Рис. 2. Выстраивание возбужденного состояния ($F=5/2$) в зависимости от интенсивности облучения при разной степени выстраивания основного состояния ($F=7/2$) ρ_0^2/ρ_0^0 : 1 — 0.17, 2 — 0.175, 3 — 0.18, 4 — 0.185.

Выстраивание η^2 возбужденного состояния легко рассчитывается в двух предельных случаях: при слабом возбуждении, когда электромагнитное поле не нарушает ансамбля молекул в основном состоянии, и при сильном возбуждении, стремящемся выровнять населенности верхнего и нижнего состояний. В первом случае поляризационные моменты возбужденного состояния легко находятся из уравнений [4], имеющих вид

$$\dot{\eta}_q^z + \gamma \eta_q^z = \frac{i}{\hbar} (2F_p + 1)^{-1/2} \sum_{q', q_1} \varepsilon_{-q_1} C_{qq'q_1}^{xx'} [d\psi_{q'}^{x'} + d^* \psi_{-q}^{x'*}, (-1)^{x+x'+q'}].$$

В основном эксперименте линейная поляризация облучающего света была направлена вдоль молекулярного пучка. Ось выстраивания основного состояния ρ , как уже говорилось выше, тоже направлена вдоль пучка. Если так же направить и ось квантования, то в уравнениях остаются только члены с $q=0$ и для η_0^2/η_0^0 получается

$$\frac{\eta_0^2}{\eta_0^0} = \frac{-0.0345 + 0.1804 (\rho_0^2/\rho_0^0)}{0.287 - 0.4225 (\rho_0^2/\rho_0^0)}.$$

Другой предельный случай отношения η_0^2/η_0^0 вычислен следующим образом: поскольку выстраивание продольное, его можно описать распределением населенностей по зеемановским подуровням. Поляризация лазерного света, направленная по оси квантования, разрешает только π -переходы, при которых

каждый нижний зеemanовский подуровень связан только с одним верхним, и перемешивания с подуровнями с разными m не происходит. При больших интенсивностях населенности каждой пары связанных оптическим переходом подуровней выравниваются, а из определенного таким образом распределения населенностей в возбужденном состоянии уже легко находится его выстраивание.

В таблице приведены значения выстраивания η_0^2 возбужденного состояния, отнесенного к его населенности η_0^0 , для двух предельных значений интенсивности облучения $I \rightarrow \infty$ и $I \rightarrow 0$ при разных значениях выстраивания основного состояния ρ_0^2/ρ_0^0 . Таблица показывает, что для значений ρ_0^2/ρ_0^0 больше 0 и меньше 0.19 выстраивание возбужденного состояния η_0^2 при интенсивностях облучения $I \rightarrow \infty$ и $I \rightarrow 0$ противоположно по знаку.

Ось выстраивания возбужденного состояния, как и основного, направлена вдоль пучка. Магнитное поле приложено перпендикулярно ему. Если же теперь ось квантования направить по магнитному полю, в выстраивании при повороте осей координат появятся члены с $q = \pm 2$, а это уже стандартная ситуация для появления эффекта Ханле. При смене знака выстраивания возбужденного состояния изменяется знак при члене $q = \pm 2$ и амплитуда сигнала Ханле тоже меняет знак.

При рассмотрении магнитного резонанса магнитное поле при определении выстраивания возбужденного состояния игнорировать нельзя, так как в центре резонанса оно имеет отличное от нуля значение. Если бы оно было направлено перпендикулярно пучку, как при регистрации сигналов Ханле, то полностью или частично разрушило бы выстраивание основного состояния. Но в эксперименте по магнитному резонансу поле было направлено вдоль пучка. А в этих условиях выстраивание разрушается только высокочастотным полем и, поскольку распределение населенностей магнитных подуровней с ростом интенсивности облучения инвертируется (меняется знак выстраивания), меняет знак и амплитуда резонанса.

На рис. 2 показано изменение выстраивания η_0^2/η_0^0 с ростом мощности облучения, рассчитанное из уравнений для статистического тензора $[4]$ (пример их приведен ранее) до шестого порядка по амплитуде поля $\mathcal{E}$. По оси абсцисс отложена интенсивность $\mathcal{E}^2$ облучения в приведенных единицах. Решения имеют смысл только при малых $\mathcal{E}$, на что указывает загиб кривых при $\mathcal{E}^2 \sim 0.3-0.4$. Рис. 2 показывает, что чем больше выстраивание основного состояния ρ_0^2/ρ_0^0 , тем при меньших значениях $\mathcal{E}^2$ происходит инверсия. Для значений ρ_0^2/ρ_0^0 около 0.175—0.185 инверсия происходит в полях, для которых еще допустимо решение уравнений методом последовательных приближений. В принципе по точке инверсии, наблюденной экспериментально, можно определить исходное выстраивание основного состояния ρ_0^2/ρ_0^0 .

Согласно предлагаемой модели, инверсия выстраивания верхнего состояния существует только при положительном выстраивании нижнего состояния при возбуждении линией I . При отрицательном значении ρ_0^2 инверсии нет. На других переходах картина может быть обратной, но в любом случае инверсия может быть только при одном знаке ρ_0^2 : либо только при $\rho_0^2 > 0$, либо только при $\rho_0^2 < 0$. Но смена знака выстраивания нижнего состояния эквивалентна повороту на 90° линейной поляризации облучающего света. В $[1, 2]$ имеются сведения о инверсии при обоих направлениях поляризации лазерного света, но на разных линиях, и нет ни одной линии, на которой была бы обнаружена инверсия при обоих направлениях поляризации облучения.

Инверсия эффекта Ханле была наблюдена в рассматриваемых работах и в газовой ячейке. По-видимому, в этом эксперименте облучение велось лазерным светом со спектральной шириной намного меньше доплеровской, и тогда возбуждался ансамбль молекул с выделенной продольной проекцией скорости,

ρ_0^2/ρ_0^0	η_0^2/η_0^0 при $I \rightarrow 0$	η_0^2/η_0^0 при $I \rightarrow \infty$
-0.1	-0.16	-0.05
0	-0.12	0
0.05	-0.095	0.028
0.1	-0.064	0.057
0.15	-0.033	0.084
0.19	0	0.114
0.2	0.005	0.122

и скрытое выстраивание, наведенное столкновениями, становится в таком ансамбле явным. Таким образом, этот эксперимент также объясняется предлагаемой в настоящей заметке моделью.

Литература

- [1] Weber H. G., Bylicki F., Miksch G. — Phys. Rev., 1984, v. 30, N 1, p. 270.
- [2] Weber H. G., Miksch G. — Phys. Lett., 1984, v. 106A, N 5—6, p. 239.
- [3] Дашевская Е. И., Никитин Е. Е., Уманский С. Я. — В кн.: IX Всесоюз. конф. по физике электронных и атомных столкновений: Тез. докл. 1984, т. 1, с. 77.
- [4] Дьяконов М. И., Перель В. И. — Опт. и спектр., 1966, т. 20, в. 3, с. 472.

Поступило в Редакцию 20 декабря 1985 г.

УДК 539.184+535.5

Опт. и спектр., т. 60, в. 6, 1986

МОДЕЛЬНЫЙ РАСЧЕТ СПИНОВОЙ ПОЛЯРИЗАЦИИ ОЖЕ-ЭЛЕКТРОНОВ

Кабачник Н. М., Сажина И. П.

Недавно было предсказано [1, 2], что Оже-электроны, испускаемые после ионизации внутренних оболочек атомов пучком быстрых частиц, могут быть поляризованы, даже если пучок и мишень не поляризованы. Экспериментальные исследования поляризации Оже-электронов для атомов благородных газов уже начаты [3]. Однако до сих пор не были проведены расчеты степени поляризации для реальных Оже-переходов. В простейшем случае распада вакансии с моментом $j=3/2$ вектор спиновой поляризации Оже-электронов связан со степенью выстроенности вакансии (A_{20}) следующей формулой [1, 2]:

$$P = n \frac{\xi_2 A_{20} \sin 2\theta}{1 + \alpha_2 A_{20} P_2(\cos \theta)},$$

где $n = k_i \times k_l / (k_i k_l \sin \theta)$. Здесь k_i и k_l — импульсы налетающей частицы и Оже-электрона, θ — угол между ними. Коэффициент анизотропии α_2 и параметр ξ_2 зависят от амплитуд Оже-распада по различным каналам. Общие выражения для α_2 и ξ_2 содержатся в [1, 2]. В [4] мы получили выражения для параметров ξ_2 и α_2 для различных Оже-переходов, возникающих при распаде $L_3(p_{3/2})$ вакансии. В этих выражениях ξ_2 и α_2 определяются через комплексные амплитуды Оже-распада в $L-S$ -связи. Для того чтобы получить численные значения ξ_2 и α_2 для конкретных переходов, необходимо рассчитать эти амплитуды с помощью какой-либо атомной модели.

В настоящей работе мы сообщаем о первых численных расчетах степени поляризации для некоторых $M-NV$ Оже-переходов Kr и Xe, которые могут представлять интерес для экспериментаторов. Так как выбранные переходы возникают при заполнении вакансий $d_{3/2}$ и $d_{5/2}$, мы использовали общие формулы [4] для получения выражений для ξ_2 и α_2 в этих случаях. Заметим, что в случае вакансии $d_{3/2}$ поляризация определяется двумя параметрами: ξ_2 и ξ_4 . Последний связан с тензором выстроенности 4-го ранга A_{40} иона. Однако для первой оценки достаточно рассчитать только параметр ξ_2 , так как обычно параметр $A_{40} \ll A_{20}$ [5] и вклад члена, пропорционального $\xi_4 A_{40}$, в поляризацию пренебрежимо мал.

Для описания конечного состояния иона с двумя вакансиями мы использовали приближение $L-S$ -связи. В этом случае коэффициент анизотропии α_2 может быть записан в следующем виде:

$$\alpha_2 = \left[\sum_{i \leq j} a_{ij} \operatorname{Re} (M(l_i) M^*(l_j)) \right] \left(\sum_i b_i |M(l_i)|^2 \right)^{-1},$$