

фильтров с известными кривыми пропускания. Кривые пропускания соседних фильтров пересекаются так, что можно непрерывно просмотреть весь видимый участок спектра, в среднем они имеют полуширины ~ 10 нм. Для воспроизведения формы спектральной кривой использовался метод сравнения светового потока с известным спектральным распределением от образцового источника со спектром излучения ионизационного свечения. В качестве образцового источника использовалась лампа накаливания СИ-8-200, для которой предварительно была определена яркостная температура, позволяющая рассчитать распределение энергии светового потока по спектру.

Экспериментальная кривая приведена на рис. 2, где по оси ординат отложен световой поток ионизационного свечения, возбуждаемый релятивистскими электронами. Как следует из экспериментальных данных, максимум свечения находится в области 390 нм, что совпадает с уровнем первой отрицательной системы N_2^+ (391.4 нм) для воздуха, который очень эффективно возбуждается при малых энергиях налетающих электронов [1, 5]. Это подтверждает предположение о том, что возбуждение в основном происходит за счет медленных вторичных частиц. В области длин волн $550 < \lambda < 700$ нм световой поток ионизационного свечения находится на уровне фона, который составляет порядка 10% от максимального значения на длине волны $\lambda = 390$ нм.

Авторы благодарны И. И. Залюбовскому и И. А. Гришаеву за постоянную помощь и интерес к работе.

Литература

- [1] A. N. Bunner. Cornell-Sydney Univ., Reprint. N. Y., 1965.
- [2] И. П. Запесочный, В. В. Скубенчик. Опт. и спектр., 21, 140, 1966.
- [3] А. Г. Коваль, В. Т. Коппе, Я. М. Фогель. Космич. исслед., 4, 74, 1966.
- [4] G. Davidson, R. O'Neil. J. Chem. Phys., 41, 3946, 1964.
- [5] P. L. Hartman. Planet. Space Sci., 16, 1315, 1968.

Поступило в Редакцию 1 июня 1972.

УДК 535.37 : 548.0

СПИНОВЫЙ ОБМЕН МЕЖДУ ТРИПЛЕТНЫМИ ЭКСИТОНАМИ

Е. Л. Румянцев и К. М. Салихов

Введение

Спектры ЭПР позволяют определить ряд физических характеристик триплетных экситонов. Важные сведения о подвижности экситонов и их взаимодействии между собой содержат экспериментальные данные по концентрационному уширению линий, по разрушению структуры спектра и обменному сужению спектра ЭПР [1], а также данные по передаче возбуждения между компонентами спектра ЭПР триплетных экситонов, полученные методом электронного двойного резонанса [2]. При интерпретации этих данных [1, 2] влияние обменного взаимодействия триплетных экситонов учитывается добавлением в кинетическое уравнение для матрицы плотности экситона дополнительных слагаемых вида

$$\left. \begin{aligned} \left(\frac{\partial \rho_{00}}{\partial t} \right)_{ex} &= -\frac{2}{3} \omega_{ex} (2\rho_{00} - \rho_{11} - \rho_{-1-1}), \\ \left(\frac{\partial \rho_{11}}{\partial t} \right)_{ex} &= \left(\frac{\partial \rho_{-1-1}}{\partial t} \right)_{ex} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial \rho_{00}}{\partial t} \right)_{ex}, \\ \left(\frac{\partial \rho_{01}}{\partial t} \right)_{ex} &= -\omega_{ex} (\rho_{01} - \rho_{-10}), \\ \left(\frac{\partial \rho_{-10}}{\partial t} \right)_{ex} &= \omega_{ex} (\rho_{-10} - \rho_{01}), \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

где ω_{ex} — частота спинового обмена.

Однако экспериментальные данные не всегда описываются этими уравнениями [1, 2], которые, как будет показано ниже, соответствуют определенной предельной ситуации.

В настоящей работе в рамках модели внезапного включения обменного взаимодействия между триплетными экситонами при столкновениях рассчитаны эффективности различных процессов спинового обмена и получены кинетические уравнения, которые более полно чем (1) описывают влияние обменного взаимодействия экситонов.

Рассматривается следующая модель: «локализованные» экситоны сталкиваются друг с другом со средней частотой Z , средняя продолжительность столкновения τ_c . Учитывая экспоненциально быстрый спад обменного взаимодействия с ростом расстояния между экситонами, можно предположить, что обменное взаимодействие V_{ex} внезапно включается, когда два экситона оказываются в соседних ячейках в непосредственном контакте,

$$\hbar V_{ex}(t) \begin{cases} = \hbar J_0 \hat{S}_{1x} \hat{S}_{2x} + \hbar J (\hat{S}_{1x} \hat{S}_{2x} + \hat{S}_{1y} \hat{S}_{2y}) & \text{при } 0 \leq t \leq \tau_c, \\ = 0 & \text{при } t < 0, t > \tau_c. \end{cases} \quad (2)$$

Отличие J от J_0 может быть обусловлено вкладом диполь-дипольного взаимодействия экситонов.

Предполагается, что концентрация экситонов достаточно низкая, $Z\tau_c < 1$, и поэтому можно учитывать только двойные столкновения. Для такой модели влияние столкновений можно учесть добавлением в кинетическое уравнение для матрицы плотности экситона ρ дополнительного слагаемого вида (см. [3, 4])

$$\left(\frac{\partial \rho}{\partial t} \right)_{ex} = -Z (\rho(1) - S \rho(1) S^+), \quad (3)$$

здесь S — матрица столкновения

$$S = \exp(i\hat{H}_0 t_c) \exp(-i\hat{H} t_c), \quad (4)$$

где $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{ex}$, $\hat{H}_0$ — спин-гамильтониан двух невзаимодействующих экситонов [5]

$$\hat{H}_0 = \hbar D (\hat{S}_{1x}^2 + \hat{S}_{2x}^2), \quad (5)$$

где D — константа начального расщепления.

В высокотемпературном приближении $\rho = 1 + \sigma$ и по элементам матрицы σ уравнение (3) можно линеаризовать. Черта в $S \rho \rho S^+$ означает усреднение по продолжительностям столкновения t_c с распределением $\tau_c^{-1} \exp(-t_c/\tau_c)$.

Элементы S -матрицы в представлении прямого произведения собственных функций $\hat{S}_{1x}$ и $\hat{S}_{2x}$, $|m_1 m_2\rangle = |m_1\rangle \times |m_2\rangle$ равны

$$\left. \begin{aligned} S_{11,11} &= S_{-1-1,-1-1} = \exp(-iJ_0 t_c), \\ S_{01,01} &= S_{0-1,0-1} = \cos J t_c, \\ S_{01,10} &= S_{0-1,-10} = -i \sin J t_c, \\ S_{00,00} &= c_1^2 \exp(-i\lambda_1 t_c) + c_2^2 \exp(-i\lambda_2 t_c), \\ S_{00,-11} &= -\frac{c_1 c_2}{\sqrt{2}} [\exp(-i\lambda_1 t_c) - \exp(-i\lambda_2 t_c)], \\ S_{1-1,00} &= \exp(i2D t_c) S_{00,-11}, \\ S_{1-1,1-1} &= \frac{1}{2} \{ \exp(iJ_0 t_c) + c_2^2 \exp[i(2D - \lambda_1) t_c] + c_1^2 \exp[i(2D - \lambda_2) t_c] \}, \\ S_{1-1,-11} &= S_{1-1,1-1} - \exp(iJ_0 t_c), \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

где

$$c_1 = \cos \varphi, \quad c_2 = \sin \varphi, \quad \cos 2\varphi = R^{-1} \left(D - \frac{J_0}{2} \right), \quad R^2 = \left(D - \frac{J_0}{2} \right)^2 + 2J^2,$$

$$\lambda_1 = D - \frac{J_0}{2} - R, \quad \lambda_2 = D - \frac{J_0}{2} + R.$$

Из (3), (6) получаем, что вклад обменного взаимодействия в изменение населенностей уровней экситонов описывается уравнениями

$$\left. \begin{aligned} \left(\frac{\partial \sigma_{00}}{\partial t} \right)_{ex} &= -\frac{2}{3} Z \rho (2\sigma_{00} - \sigma_{11} - \sigma_{-1-1}), \\ \left(\frac{\partial \sigma_{11}}{\partial t} \right)_{ex} &= \left(\frac{\partial \sigma_{-1-1}}{\partial t} \right)_{ex} = -\frac{1}{2} \left(\frac{\partial \sigma_{00}}{\partial t} \right)_{ex}, \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

где

$$\rho = |S_{00,-11}|^2 = \frac{2J^2 \tau_c^2}{1 + 4 \left[\left(D - \frac{J_0}{2} \right)^2 + 2J^2 \right] \tau_c^2}. \quad (8)$$

Вклад столкновений в изменение недиагональных элементов матрицы плотности можно представить в виде

$$\left. \begin{aligned} \left(\frac{\partial \sigma_{01}}{\partial t} \right)_{ex} &= -Z p_{1\sigma_{01}} + Z p_{2\sigma_{-10}}, \\ \left(\frac{\partial \sigma_{-10}}{\partial t} \right)_{ex} &= Z p_{2\sigma_{01}} - Z p_{1\sigma_{-10}}, \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

где

$$\left. \begin{aligned} p_1 &= 1 - \frac{1}{3} \sum_{k=0, \pm 1} \overline{(S_{0k, 0k} S_{1k, k1}^+ + S_{0k, k0} S_{k1, 1k}^+)}, \\ p_2 &= \frac{1}{3} \sum_{k=0, \pm 1} \overline{(S_{-1k, -1k} S_{0k, 0k}^+ + S_{-1k, k-1} S_{k0, 0k}^+)}. \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

Эффективность процессов спинового обмена

	$J=J_0, J>D, \frac{D}{\tau_c} < 1$	$J=J_0, J>D, \frac{D}{\tau_c} > 1$	$J=J_0, J<D, \frac{D}{\tau_c} \approx 1$	$J_0>J>D, \frac{D}{\tau_c} < 1$
p	$\frac{2J^2\tau_c^2}{1+9J^2\tau_c^2}$	$\frac{2}{9}$	$\frac{2J^2\tau_c^2}{1+4D^2\tau_c^2}$	$\frac{2J^2\tau_c^2}{1+J_0^2\tau_c^2}$
$\text{Re } p_1$	$\frac{2J^2\tau_c^2}{1+9J^2\tau_c^2}$	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{3} \frac{J^2\tau_c^2}{1+J^2\tau_c^2} + \frac{2}{3} \frac{J^2\tau_c^2}{1+4J^2\tau_c^2}$	$\frac{2}{3} \frac{J_0^2\tau_c^2}{1+J_0^2\tau_c^2} + \frac{1}{3} \frac{J^2\tau_c^2}{1+J^2\tau_c^2}$
$\text{Re } p_2$	$\frac{2J^2\tau_c^2}{1+9J^2\tau_c^2}$	$\frac{5}{16} \frac{1}{D^2\tau_c^2}$	$-\frac{1}{6D} \left(\frac{1}{1+J^2\tau_c^2} - \frac{1}{1+4J^2\tau_c^2} \right)$	$\frac{2}{3} \frac{J}{J_0} \left(\frac{1}{1+J^2\tau_c^2} - \frac{1}{1+J_0^2\tau_c^2} \right)$
$\text{Im } p_1$	$\frac{2D\tau_c}{9} \left[1 + \frac{1}{1+9J^2\tau_c^2} \right]$	$\frac{2}{3} \frac{1}{D\tau_c}$	$-\frac{1}{3} \frac{J\tau_c}{1+J^2\tau_c^2} + \frac{1}{3} \frac{J\tau_c}{1+4J^2\tau_c^2}$	$-\frac{1}{3} \frac{J_0\tau_c}{1+J_0^2\tau_c^2} - \frac{1}{3} \frac{J\tau_c}{1+J^2\tau_c^2}$
$\text{Im } p_2$	$-2D\tau_c \frac{J^2\tau_c^2}{1+9J^2\tau_c^2}$	$-\frac{1}{4} \frac{1}{D\tau_c}$	$-\frac{J^2\tau_c}{6D} \left(\frac{1}{1+J^2\tau_c^2} + \frac{2}{1+4J^2\tau_c^2} \right)$	$O \left(\frac{J^3}{J_0^3} \right)$

В таблице приведены значения p_1 , p_2 и p в некоторых предельных ситуациях. При $J=J_0$, $D\tau_c=0$ первый столбец таблицы воспроизводит результаты работы [6], кинетические уравнения сводятся к (1).

Обсуждение результатов

Частота переноса энергии между триплетными экситонами $\frac{1}{3} Zp$ может быть измерена в опытах по двойному электрон-электронному резонансу [2, 6]. Эффективности обмена фазы p_1 и p_2 можно определить из анализа формы линий ЭПР (см., например, [4]). В области $Z|p_2| < |D|$ компоненты спектра ЭПР уширяются почти независимо, обменное уширение равно

$$\Delta\omega_{ex} = Z \text{Re } p_1, \quad (11)$$

а измеряемое расщепление между компонентами равно

$$\Delta\omega_0 = \omega_{0 \rightarrow 1} - \omega_{-1 \rightarrow 0} = 2|D - Z \text{Im } p_1| - \frac{Z^2 |p_2|^2}{|D - Z \text{Im } p_1|}. \quad (12)$$

Для систем, изученных в [1, 2], $D \sim 100$ эрст., $Z \sim 10^8 \div 10^9$ сек.⁻¹. При $\tau_c \sim 10^{-10}$ сек. сдвиг частоты $Z \text{Im } p_1 \sim (1 \div 10)$ эрст. и может быть обнаружен на опыте (ср. [1]). В области быстрого спинового обмена при $Z|p_2| > D$ компоненты спектра ЭПР сливаются и дают линию поглощения в центре с шириной

$$\Delta\omega'_{ex} = Z (\text{Re } p_1 - |p_2|) + \frac{D^2}{2Z|p_2|}. \quad (13)$$

Из таблицы видно, что только при $J=J_0$, $D\tau_c \rightarrow 0$, $\text{Re } p_1 = \text{Re } p_2$, $\text{Im } p_1, 2=0$ обменное уширение $\Delta\omega_{ex} = Zp_1$, расщепление в спектре $2D - Z^2 p_1^2/D$, ширина спектра в области обменного сужения $D^2/2Zp_1$ описываются одной и той же частотой спинового обмена $\omega_{ex} = Zp_1$ [см. уравнение (1)]. Как показано в работе [1], экспериментальные

данные по влиянию обменного взаимодействия триплетных экситонов на их спектры ЭПР не всегда удается описать введением одного параметра ω_{ex} [см. (1)]. Уравнения (9)–(13) дают более полное описание процессов фазовой релаксации экситонов благодаря спиновому обмену и позволяют описать имеющиеся экспериментальные данные (см. [1, 2]).

В работе [2] получен такой интересный результат: частота передачи спинового возбуждения меньше частоты обмена фазы между триплетными экситонами в некоторых пон-радикальных солях на основе тетрацианхинодиметана. Из таблицы видно, что анизотропия процессов спинового обмена, обусловленная энергией расщепления в нулевом поле или анизотропным характером собственно обменного спин-гамилтониана, $J \neq J_0$, дает $Zp \leq ZR_{p1}$ в качественном согласии с данными работы [2].

Литература

- [1] M. I. Jones, D. B. Chesnut. J. Chem. Phys., 38, 1311, 1963.
- [2] П. А. Стунжас, В. А. Бендерский, Л. А. Блюменфельд, Е. А. Соколов. Опт. и спектр., 28, 278, 1970.
- [3] К. М. Салихов, А. Б. Докторов. Тр. XVI амперовского коллоквиума, Бухарест, 1970.
- [4] К. М. Salikhov, A. B. Doktorov, Ju. N. Molin, K. I. Lamaev. J. Magn. Res., 5, 189, 1971.
- [5] R. M. Lynden-Bell. Molec. Phys., 8, 71, 1964.
- [6] П. А. Стунжас, В. А. Бендерский. Опт. и спектр., 30, 1041, 1971.

Поступило в Редакцию 7 июня 1972 г.

УДК 539.186.1 : 537.523/527

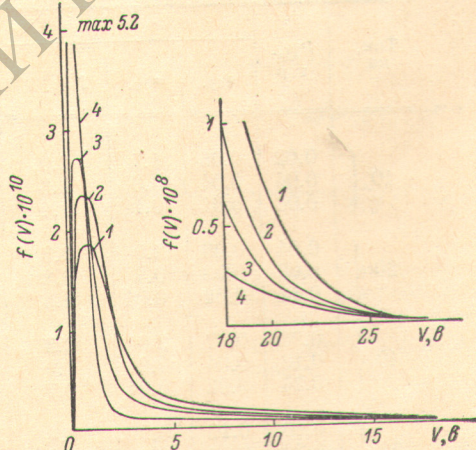
ВОЗБУЖДЕНИЕ СМЕСИ $\text{He}-\text{Ne}-\text{H}_2$ В РАЗРЯДЕ В ПОЛОМ КАТОДЕ. III

Ю. М. Каган и А. С. Тароян

В наших предыдущих работах [1, 2] были исследованы электрические и оптические характеристики разряда в полном катоде в гелии и в смеси гелия с неоном. В настоящей работе проделаны аналогичные измерения и расчеты для тройной смеси $\text{He}-\text{Ne}-\text{H}_2$. Измерения велись при постоянном давлении гелия $P_{\text{He}}=1$ тор и неона $P_{\text{Ne}}=0.1$ тор. Давление водорода менялось от 0.02 до 0.3 тор. Токи брались равными $i=10, 20, 40, 60$ ма. Использовался полый катод $\varnothing 20$ мм и длиной 100 мм.

На рисунке представлены типичные функции распределения электронов в центре полого катода, нормированные на концентрацию электронов для тока $i=40$. Из рисунка видно, что полная концентрация электронов с добавлением водорода меняется незначительно и что добавление водорода вызывает уменьшение числа электронов с энергиями от 3 до 25 эв.

В табл. 1 представлена измеренная методом поглощения концентрация возбужденных атомов гелия на уровнях $2^3S, 2^1S, 2^3P, 2^1P$. (В таблице они обозначены как N_1, N_2, N_3, N_4). Из таблицы видно, что при добавлении водорода концентрации падают в несколько раз. Измерялись числа квант, испускаемых с уровней с $n=3$ и $n=4$ одиночных. Сравнение с соответствующими числами квант в смеси $\text{He}-\text{Ne}$ показывает, что имеет место некоторое уменьшение числа квант. Расчет полного числа квант с этих уровней велся по формулам работы [1]. Из расчета видно, что добавление водорода уменьшает роль ступенчатых процессов в заселении верхних уровней. Для расчетов концентрации атомов гелия на уровнях $2^3S, 2^1S, 2^3P, 2^1P$ использовались уравнения



Функция распределения электронов при $i=40$ ма.

1 — $P_{\text{H}_2}=0$, 2 — $P_{\text{H}_2}=0.08$, 3 — $P_{\text{H}_2}=0.16$, 4 — $P_{\text{H}_2}=0.24$ тор.