

НАБЛЮДЕНИЕ КВАНТОВЫХ БИЕНИЙ В КИНЕТИКЕ ТЕРМАЛИЗАЦИИ ДВУХАТОМНЫХ МОЛЕКУЛ В ОСНОВНОМ ЭЛЕКТРОННОМ СОСТОЯНИИ

М.П.Аузиньш, М.Я.Таманис, Р.С.Фербер

Экспериментально обнаружены магнитные квантовые биения в кинетике термализации колебательно-вращательного уровня основного состояния двухатомных молекул после опустошения лазерным импульсом.

“Свободные” квантовые биения в кинетике излучения наиболее наглядно демонстрируют наличие в системе когерентной суперпозиции невырожденных состояний и позволяют определить их расщепление¹. Метод использовался в атомных системах и возбужденных состояниях молекул. Нами впервые зарегистрированы биения между зеемановскими подуровнями колебательно-вращательного (КВ) уровня v'', J'' основного электронного состояния α'' двухатомных молекул, помещенных во внешнее магнитное поле. Здесь существенно, что хотя когерентность между подуровнями создавалась в нелинейном процессе оптической накачки “опустошением”² при поглощении $(v'', J'')\alpha'' \rightarrow (v', J')\alpha'$, где $(v', J')\alpha'$ относится к электронно-возбужденному состоянию, биения наблюдались после прекращения действия интенсивного опустошающего лазерного импульса в кинетике флуоресценции, вызванной слабым пробным лучом. В этом случае полностью отсутствуют нелинейные искажения, имевшие место в методе резонанса биений при гармонической модуляции возбуждения, где наличие сильного светового поля приводит к уширению и сдвигу сигнала^{3,4}. Прецизионное определение частоты квантовых биений однозначно определяет величину магнитного момента (фактора Ланде) фиксированного КВ-уровня. Это дает возможность детально изучить магнетизм определенных КВ-уровней дивалентных основных электронных состояний димеров, вызванный примешиванием каких-либо других, парамагнитных состояний.

Рассмотрим механизм образования биений. Пусть оптическое выстраивание уровня $(v'', J'')\alpha''$ создается лазерным излучением, направленным по оси OX и линейно поляризованным по OY , рис. 1. Типичной является ситуация, когда опустошение КВ-уровня (v'', J'') в процессе поглощения со скоростью Γ_p конкурирует в основном с его заселением безызлучательными переходами со скоростью γ внутри состояния α'' . Если $\Gamma_p \gg \gamma$, то создается заметное оптическое выстраивание нижнего уровня $(v'', J'')\alpha''$. Пространственное распределение угловых моментов ансамбля частиц на этом уровне в пределе больших угловых моментов представлено на рис. 1 для Q -поглощения, т.е. когда $J' = J''$. Видно, что ансамбль приобретает ненулевой квадрупольный момент.

Выберем накачивающее излучение в виде импульса, рис. 2., длительность которого Δt много меньше периода прецессии во внешнем магнитном поле $\mathbf{B} \parallel OZ$, а также меньше характерного времени релаксации γ^{-1} , но достаточна для создания заметного выстраивания. Тогда после прекращения в момент времени t_0 действия импульса (или ослабления его до уровня пробного излучения) распределение моментов на рис. 1. прецессирует вокруг \mathbf{B} с частотой $\omega = \mu_0 g B / \hbar$, где g – фактор Ланде, μ_0 – магнетон Бора, и одновременно заполняется до сферически симметричного со скоростью γ в процессе релаксации (термализации). Если скорость распада возбужденного состояния $\Gamma \gg \gamma$, а частота его прецессии $\Omega \ll \Gamma$ (что реально выполняется, например, для щелочных димеров Li_2 , Na_2 , K_2), то кинетика резонансной серии флуоресценции из $(v', J')\alpha'$, возбужденной слабым излучением подложки импульса при $t > t_0$, отражает переходный процесс в основном состоянии $(v'', J'')\alpha''$; см. рис. 2. При наложении магнитного поля \mathbf{B} на фоне моноэкспоненциального возрастания интенсивности с постоянной γ (о корректности такого приближения см.⁵) должна проявляться гармоническая модуляция с частотой 2ω , так как с этой частотой распределение моментов на рис. 1. переходит в себя.

Сказанное позволяет записать выражение для ожидаемого сигнала интенсивности флуоресценции в переходном процессе при $t > t_0$ для случая наблюдения вдоль OZ за компонентой I_{σ_y} , поляризованной по OY в виде

$$I_{\sigma_y} = I(\infty) - [I(\infty) - I(0)]e^{-\gamma(t-t_0)} + Ce^{-\gamma(t-t_0)} \cos[2\omega(t-t_0) + \varphi], \quad (1)$$

где $I(\infty)$ — интенсивность флуоресценции для термически равновесно заселенного нижнего состояния при $(t-t_0) \rightarrow \infty$, $I(0)$ — интенсивность при $t=t_0$, C — положительная константа, γ — фаза, возникающая из-за конечной ширины импульса накачки. Результат подтверждается более строгим рассмотрением, причем можно показать, что при наблюдении по OY , рис. 1, в сигнале I_{π_z} проявляются биения с частотой 2ω и 4ω , а в I_{σ_x} — только с 4ω , при этом вклад от компоненты гексадекапольного момента, дающей частоту 4ω , очень невелик.

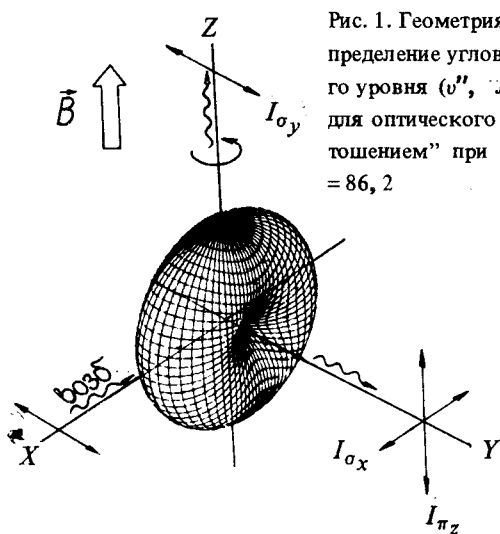


Рис. 1

Рис. 1. Геометрия эксперимента и распределение угловых моментов нижнего уровня (v'' , J'') α'' , рассчитанное для оптического выстраивания "опустошением" при $\Gamma_p/\gamma = 10/3$, $\Gamma/\Gamma_p = 86,2$

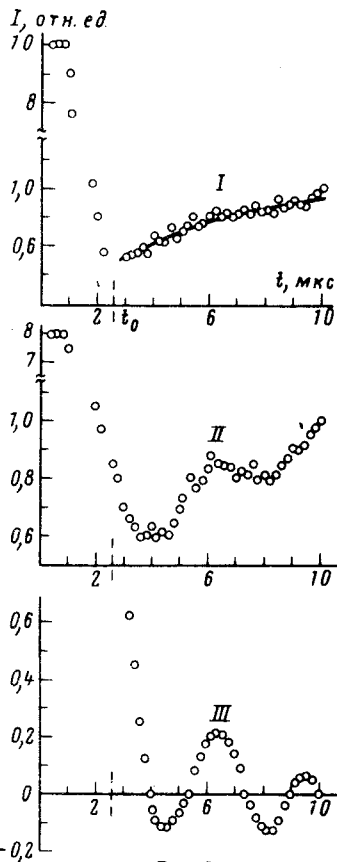


Рис. 2

Рис. 2. Кинетика сигнала флуоресценции I_{σ_y} без магнитного поля (I) и при наложении поля $B = 0,8$ Тл (II). Кривая (III) получена вычитанием сигналов (II) и (I) и сглаживанием шума

В эксперименте в качестве объекта выбраны молекулы K_2 в ячейке, содержащей насыщенные пары калия. Отросток с металлическим калием поддерживался при температуре 441 К, соответствующей концентрации атомов калия $N_K = 0,29 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$, а димеров $N_{K_2} = 0,13 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$. Ячейка соединялась с вакуумной системой, дающей вакуум не хуже 10^{-6} мм рт. ст. Излучение 632,8 нм от He — Ne-лазера ЛГ-38 мощностью около 60 мВт наиболее эффективно возбуждает переход $(1,72)X^1\Sigma_g^+ \rightarrow (8,72)B^1\Pi_u$. Электрооптический модулятор МЛ-102, управляемый генератором импульсов Г5-15, позволял получить импульсы длиной 1,8 мкс при глубине модуляции около 0,85. Флуоресценция I_{σ_y} регистрировалась на линии Q_{16} резонансной серии, выделяемой монохроматором ДФС-12, с помощью охлаждаемого ФЭУ-79 в режиме счета фотонов. Временная зависимость определялась методом задержанных совпадений, используя анализ статистики появления отдельных фотонов, преобразование время-амплитуда и накопление на анализаторе импульсов АИ-256-6.

На рис. 2. представлены результаты эксперимента. Видно, что при включении магнитного поля вместо монотонного экспоненциального возрастания сигнала, которое демонстрирует кривая I, проявляются периодические биения, см. кривую II. Для выявления гармонической составляющей мы, следуя выра-

жению (1), брали разность сигналов II и I, которая после сглаживания представлена на рис. 2, кривая III. Частота квантовых биений, см. кривую III, позволяет предварительно определить фактор Ланде состояния $(1,72)X^1\Sigma_g^+$ молекулы K_2 как равный $g = 1,2 \cdot 10^{-5}$. Это значение близко к полученному в ⁶ для всего X -состояния K_2 методом молекулярных пучков, а также к значению, определенному в ⁴ методом нелинейного резонанса биений. Величина g будет нами уточнена при более тщательных измерениях; при этом желательно добиться большой величины отношения ω/γ .

Авторы выражают признательность М.Законовой за помощь в обработке экспериментальных данных.

Литература

1. Александров Е.Б. УФН, 1972, 107, 592.
2. Drullinger R.E., Zare R.N. J. Chem. Phys., 1969, 51, 5532.
3. Ferber R.S., Okunevich A.I., Shmit O.A., Tamanis M.Ya. Chem. Phys. Lett., 1982, 90, 476.
4. Аузиньш М.П., Фербер Р.С. Письма в ЖЭТФ, 1984, 39, 376.
5. Auzin'sh M.P., Ferber R.S., Pirags I.Ya. J. Phys. B.: At. Mol. Phys., 1983, 16, 2759.
6. Brooks R.A., Anderson C.N., Ramsay N.F. Phys. Rev., 1964, 136A, 62.

Латвийский
государственный университет им. П.Стучки

Поступила в редакцию
18 мая 1985 г.