

НАБЛЮДЕНИЕ РЕЗОНАНСА КВАНТОВЫХ БИЕНИЙ МЕЖДУ МАГНИТНЫМИ ПОДУРОВНЯМИ С $\Delta M = 4$

М.П.Аузиньш, Р.С.Фербер

Экспериментально обнаружен нелинейный резонанс квантовых биений между зеемановскими подуровнями, отличающимися на $\Delta M = 4$. Измерения проводились на колебательно-вращательном уровне $v' = 1, J'' = 72$ о основного электронного состояния $X^1\Sigma_g^+$ молекулы K_2 ; определена величина фактора Ланде уровня.

Резонанс биений (РБ), являющийся весьма универсальным методом интерференции невырожденных состояний¹, был впервые зарегистрирован в нелинейном варианте при оптической ориентации атомов. Эффект проявляется в изменении полной интенсивности поглощения и флуоресценции при совпадении частоты амплитудной модуляции света накачки ω_m с частотой магнитного расщепления ω между $\Delta M = 1$ (ориентация) или 2ω между $\Delta M = 2$ (выстраивание). Однако нелинейный характер оптической накачки основного состояния делает возможным создание когерентности между его магнитными подуровнями с $\Delta M > 2$.

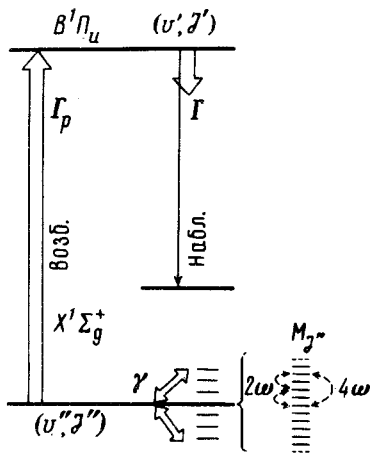


Рис.1. Схема оптической накачки „опустошением” при поглощении света в двухатомных молекулах

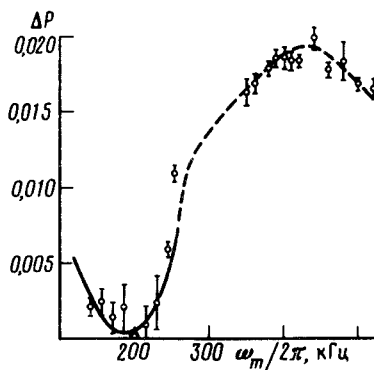


Рис.2. Изменение степени поляризации флуоресценции от частоты модуляции возбуждающего света

Удобным методом для этой цели представляется оптическая накачка „опустошением” двухатомных молекул, рис.1, так как при этом проявляются поляризационные моменты (ПМ) ранга больше двух^{2,3}. Так, при трех актах поглощения за время существования в основном состоянии когерентности становится возможным эффект РБ между $\Delta M = 4$. О первом наблюдении такого эффекта сообщается в настоящей работе.

При пересечении уровней в магнитном поле $H = 0$ (эффект Ханле) проявляются ПМ основного состояния ϕ_q^k ранга $k = 4$ и 6 ². Хотя дополнительный пик в сигнале Ханле дает ПМ с $k = 6$, а не с $k = 4$, именно ϕ_q^4 является моментом наивысшего ранга, непосредственно проявляющимся во флуоресценции, причем его вклад в сигнал отнюдь не мал³. Это позволяет ожидать сигнал РБ на частоте $\omega_m = 4\omega$ в дополнение к сигналам на ω и 2ω , зарегистрированным и исследованным ранее на молекулах $^{130}\text{Te}_2$ в основном электронном состоянии $X^1\Sigma_g^+$ ($v'' = 6, J'' = 52$), см.⁴.

В качестве объекта в данной работе выбраны молекулы K_2 . Линейно-поляризованным излучением He-Ne-лазера 632.8 нм возбуждался Q -переход $X^1\Sigma_g^+(1, 72) \rightarrow B^1\Pi_u(8, 72)$, рис. 1. При этом поглощение со скоростью Γ_p конкурирует с безызлучательной релаксацией γ , причем скорость распада возбужденного состояния $\Gamma \gg \gamma \sim \Gamma_p$. Лазерный луч от ЛГ-38 мощностью 60 мВт гармонически модулировался электрооптическим модулятором МЛ-102 с глубиной модуляции $\epsilon \approx 0,8$, что вызывало колебания скорости накачки $\Gamma_p = \Gamma_{p0}(1 + \epsilon \cos \omega_m t)$. Ячейка с парами калия ($T = 460$ К, концентрация атомов $[K] = 0,7 \cdot 10^{14}$ см⁻³, димеров $[K_2] = 0,5 \cdot 10^{11}$ см⁻³, см.⁵) помещалась между полюсами электромагнита, создающего поле до $H = 7200$ Гс (калибровка по ЯМР). Лазерный луч и его световой вектор E были перпендикулярны H . Для повышения эффективности накачки луч дважды пропусклся через ячейку с помощью зеркала. Флуоресценция наблюдалась вдоль H , для чего между полюсами магнита помещалось поворотное зеркало, направляющее флуоресценцию на монохроматор ДФС-12 (0,5 нм/мм), выделявший длину волны перехода $B^1\Pi_u(8, 72) \rightarrow X^1\Sigma_g^+(16, 72)$. Экспериментально удобным оказалось регистрировать нелинейный эффект РБ, измеряя усредненное по времени значение нормированной величины — степени линейной поляризации $P = (I_{\parallel} - I_{\perp}) / (I_{\parallel} + I_{\perp})$. Для измерения P входная щель делилась по высоте на две части поляризаторами, пропускающими свет I_{\parallel} и I_{\perp} , поляризованный параллельно либо перпендикулярно вектору E , а соответствующие потоки с выходной щели направлялись световодами на два ФЭУ-79 с последующей регистрацией в двухканальной системе счета фотонов.

В экспериментах регистрировалась зависимость P от частоты модуляции ω_m при фиксированном магнитном поле, равном в случае рис. 2 6750 Гс. Для устранения влияния дрейфа до и после каждого измерения $P(\omega_m)$ с временем накопления 1 мин (при скорости счета $\sim 10^4$ имп/с) измерялась P на выбранной опорной частоте ω_m^0 (двойной кружок). На графике рис. 2 изображена разность $P(\omega_m) - P(\omega_m^0) = \Delta P$. Общее время измерения зависимости на рис. 2 — около трех часов; порядок измерения точек рандомизировался.

На рис. 2 видны два резонанса. Первый — на частоте около 200 кГц — как по знаку эффекта (см.⁴), так и по положению соответствует РБ между зеemanовскими подуровнями основного состояния с $\Delta M = 2$, т.е. на частоте 2ω , если принять значение фактора Ланде, равное $g = 1,177 \cdot 10^{-5}$, определенное в⁶ для всей термически равновесной совокупности уровней (v'', J'') состояния ($X^1\Sigma_g^+$) K_2 . Второй резонанс на частоте около 400 кГц противоположен по знаку и соответствует ожидаемому сигналу РБ между $\Delta M = 4$ на частоте 4ω . Эксперименты при большем поле $H = 7150$ Гс дали такой же результат с ожидаемым сдвигом РБ по частоте. Вариации H в более широких переходах препятствуют: снизу — добротность сигнала (в смысле отношения частоты к ширине), сверху — предельное поле магнита. РБ на 2ω можно описать достаточно просто, решая систему уравнений ПМ разложением в ряд и ограничиваясь членом пропорциональным Γ_{p0}^2 / γ^2 , см.⁴. Усредненная по времени степень поляризации P для Q -переходов в этом приближении (принимая также скорость релаксации ПМ не зависящей от ранга) есть⁷

$$P = \frac{0,5}{1 + 4 \Omega^2 / \Gamma^2} \left[1 - \frac{3\Gamma_{p0}(D_{22} - 8E_{22})}{14 - 3\Gamma_{p0}(2D_{20} + D_{22})} \right], \quad (1)$$

где

$$D_{\kappa q} = 0,5 (B_{\kappa q} + B_{\kappa - q}), \quad (2)$$

$$E_{\kappa q} = \frac{\Omega}{2qi\Gamma} (B_{\kappa q} - B_{\kappa - q}), \quad (3)$$

$$B_{\kappa q} = \frac{\gamma + iq\omega}{\gamma^2 + q^2\omega^2} + 0,5 \epsilon^2 \frac{[(\gamma + iq\omega)^2 + \omega_m^2](\gamma - iq\omega)}{[\gamma^2 + (\omega_m - q\omega)^2][\gamma^2 + (\omega_m + q\omega)^2]}. \quad (4)$$

Здесь $\Omega = g_J \mu_0 H / \hbar$ — зеемановская частота для $B^1\Pi_u$ -состояния, $g_J = 1/J'(J' + 1)$, μ_0 — магнетон Бора; аналогично $\omega = g_J'' \mu_0 H / \hbar$ в (1) — (4) учтены только ПМ ранга не выше

$\kappa = 2$, и РБ связан с уменьшением $P^{(2)}$ из-за восстановления ϕ_2^2 . Чтобы таким путем описать РБ на 4ω , нужно учесть по крайней мере следующее приближение, т.е. включить ПМ ранга $\kappa = 4$, начиная с которых проявляется эффект, однако это сделать пока не удастся. Тем не менее из анализа решения системы ПМ для случая эффекта Ханле при стационарном возбуждении 2 следует, что учет ϕ_q^4 приводит к увеличению P при фиксированном H , что предсказывает другой знак сигнала РБ на $\omega_m = 4\omega$ по сравнению с 2ω , как и наблюдалось в эксперименте.

Вариация параметров g_J' , γ , Γ_{p_0} в (1) — (4) позволила при обработке сигнала на 2ω (сплошная кривая на рис.2) впервые получить значение фактора Ланде для изолированного уровня $v'' = 1$, $J'' = 72$ диамагнитного состояния ($X^1\Sigma_g^+$) K_2 . Усредненное по всем экспериментам значение равно $g_J'' = (0,99 \pm 0,04) \cdot 10^{-5}$. Отметим, что при значении констант $\Gamma = 8,62 \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$, $\gamma = \Gamma_{p_0} = 1,2 \cdot 10^6 \text{ c}^{-1}$ в (1) — (4) позиция минимума сдвинута вправо по сравнению с $\omega_m = 2\omega$ примерно до $2,075\omega$ из-за влияния эффекта Ханле возбужденного состояния. Резонанс на 4ω , кроме того, может испытывать дополнительным сдвиг в ту же сторону из-за „подложки” сигнала на 2ω . Ввиду отсутствия расчета формы сигнала эффект РБ на 4ω не использовался нами для определения g_J'' , хотя в принципе резонансы на высоких частотах могут быть перспективны из-за лучшего отношения частоты сигнала к его ширине.

Литература

1. Александров Е.Б. УФН, 1972, 107, 592.
2. Аузиньш М.П., Фербер Р.С. Оптика и спектроскопия, 1983, 55, 1105.
3. Auzinsh M.P., Ferber R.S., Pirags I.Ya. J. Phys. B, 1983, 16, 2759.
4. Ferber R.S., Okunevich A.I., Shmit O.A., Tamanis M.Ya. Chem. Phys. Lett., 1982, 90, 476.
5. Несмеянов А.Н. Давление пара химических элементов, 1961, М.-Л, изд. АН СССР, с. 113.
6. Brooks R.A., Anderson C.N., Ramsay N.F. Phys. Rev., 1964, 136A, 62.
7. Аболтиньш А.Р., Фербер Р.С. Кн.: „Процессы переноса энергии в парах металлов”, 1983, Рига, Латв. ГУ; с. 28.