

Латвийский ордена Трудового Красного Знамени  
государственный университет им. П.Стучки

На правах рукописи

Р.С.Фербер

ОПТИЧЕСКОЕ ВЫСТРАИВАНИЕ И ОРИЕНТАЦИЯ  
МОЛЕКУЛ  $\text{Na}_2$ ,  $\text{K}_2$  В ОСНОВНОМ  
ЭЛЕКТРОННОМ СОСТОЯНИИ

Специальность 01.04.05 (оптика)

Диссертация на соискание  
ученой степени кандидата  
физико-математических наук

Научный руководитель:  
кандидат физико-  
математических наук,  
доцент О.А.Шмит

Рига, 1978

## СОДЕРЖАНИЕ

ВВЕДЕНИЕ . . . . .	4
ГЛАВА I СОЗДАНИЕ И РЕГИСТРАЦИЯ ОПТИЧЕСКОГО ВЫСТРАИВАНИЯ И ОРИЕНТАЦИИ ОСНОВНОГО СОСТОЯНИЯ ДВУХАТОМНЫХ МОЛЕКУЛ . . . . .	9
§ I.1 Оптическая накачка основного состояния атомов	9
§ I.2 Обзор методов оптической накачки основного состояния двухатомных молекул и постановка задачи . . . . .	12
§ I.3 Теоретическое описание оптической накачки ( $ JM\rangle$ - представление) . . . . .	23
§ I.4 Теоретическое рассмотрение в пределе больших угловых моментов ( $ J\Omega\rangle$ - представление) . . . . .	39
§ I.5 Экспериментальная установка . . . . .	46
§ I.6 Отождествление эффекта выстраивания и ориентации ( $v'', J''$ ) $\chi' \Sigma_g^+$ - уровней $N a_2$ , $K_2$ . . . . .	54
ГЛАВА II ИССЛЕДОВАНИЕ РЕЛАКСАЦИИ ВЫСТРАИВАНИЯ ( $v'', J''$ ) $\chi' \Sigma_g^+$ -УРОВНЕЙ МЕТОДОМ ИЗМЕРЕНИЯ ПОЛЯРИЗАЦИИ И ИНТЕНСИВНОСТИ ФЛУОРЕСЦЕНЦИИ . . . . .	63
§ 2.1 Обсуждение каналов релаксации оптического выстраивания ( $v'', J''$ )-уровней . . . . .	64
§ 2.2 Определение константы поглощения . . . . .	68
§ 2.3 Константы и сечения релаксации оптически выстроенных уровней ( $v'', J''$ ) $N a_2$ при столкнове- ниях с атомами $Na$ . . . . .	69
§ 2.4 Константы и сечения релаксации ( $v'', J''$ ) $K_2$ ( $\chi' \Sigma_g^+$ ) при столкновениях с атомами $K$ , $Ne$ , $Xe$	74

§ 2.5	Теоретический расчет сечений в модели траекторий захвата . . . . .	79
§ 2.6	Обсуждение результатов . . . . .	83
ГЛАВА III	ЭФФЕКТ ХАНЛЕ УРОВНЕЙ ( $v''$ , $J''$ ) ОСНОВНОГО СОСТОЯНИЯ $N a_2$ , $K_2$ . . . . .	88
§ 3.1	Эффект Ханле в атомных и молекулярных системах . . . . .	88
§ 3.2	Теоретическое описание эффекта Ханле основного состояния двухатомных молекул . . . . .	93
§ 3.3	Экспериментальная установка . . . . .	112
§ 3.4	Отождествление сигнала Ханле основного электронного состояния $N a_2$ , $K_2$ . . . . .	115
§ 3.5	Определение констант и сечений релаксации по сигналу Ханле основного состояния; обсуждение результатов . . . . .	125
	ЗАКЛЮЧИТЕЛЬНЫЕ ВЫВОДЫ . . . . .	133
	ЛИТЕРАТУРА . . . . .	136
	ПРИЛОЖЕНИЯ . . . . .	150

## В В Е Д Е Н И Е

В последнее время, особенно благодаря применению лазерных источников света, выясняются новые существенные детали взаимодействия атомных и молекулярных систем с излучением.

Уже в опубликованной в 1950 году работе А.Кастлера /7/ было показано, что при воздействии света резонансной частоты угловой момент фотона может частично передаваться атомам. При этом в определенных случаях достигается значительная анизотропия не только в возбужденном, но и в основном состоянии, получившая название "оптическая ориентация" или для более общего случая "оптическая накачка". В 60-70-е годы различные варианты метода широко используются в оптической и радиочастотной атомной спектроскопии, став основой многих научных применений /9-12/ (определение атомных констант, в частности, сверхтонкой структуры, детальное изучение атомных столкновений), а также такой практически важной области физики и техники, как квантовая магнетометрия /13/.

В настоящее время представляется актуальным распространение этого информативного метода атомной спектроскопии также и на другие системы, в частности, двухатомные молекулы, по оптическим свойствам которых накоплено гораздо меньше информации, чем по атомам. Возможность оптической накачки двухатомного молекулярного газа в основном состоянии при поглощении линейно поляризованного лазерного излучения впервые рассмотрена и реализована лишь в 1969 году Р.Зеиром с сотр. /5/ и до сих пор изучена

еще очень мало.

Целью настоящей работы являлось развитие лазерно-флуоресцентного метода создания и детектирования оптического выстраивания и ориентации отдельных колебательно-вращательных уровней основного состояния двухатомных молекул в газовой фазе и применение метода к количественному изучению процессов релаксации  $Na_2$  и  $K_2$  при соударениях с атомами. Кроме оптической накачки, приводящей к продольному выстраиванию, исследовалось также разрушение поперечного оптического выстраивания магнитным полем, или эффект Ханле основного электронного состояния, ранее не наблюдавшийся для двухатомных молекул. Обоснование постановки задачи и выбора метода изложены в § 1.2.

Выбор щелочных молекул  $Na_2$  и  $K_2$  в качестве объекта исследования обусловлен следующими причинами: а) для щелочных молекул (димеров) наиболее хорошо известно расположение электронных термов, переход между которыми возбуждается лазерными линиями видимой области спектра; б) водородоподобные щелочные молекулы в принципе весьма благоприятны для построения теоретических моделей релаксационных процессов; в) щелочные молекулы, в частности,  $Na_2$  и  $K_2$ , перспективны в качестве рабочей среды для создания перестраиваемых лазеров на переходах  $B \rightarrow X$  и  $A \rightarrow X$  полосы /1-4/.

Действительно, в 1976-1977 годах были созданы первые лазеры на молекулах  $Na_2$ , /2-4/, обнаружившие такие положительные качества, как низкий порог генерации, возможность получения большого числа линий генерации в видимой, а в перспективе при применении молекул  $K_2$  и  $Rb_2$ , также в ближней ИК области. Для оптимизации режима работы лазеров на щелочных димерах необходимы данные о скорости релаксационных процессов в основном электронном состоянии. Такие данные практически отсутствовали в литературе, см. § 2.1.

Изучение процессов релаксации в основном электронном состоянии двухатомных молекул при парных соударениях с атомами представляет научно-теоретический интерес для выяснения механизмов молекулярно-атомных столкновений. Проблема изучения элементарных атомно-молекулярных взаимодействий возникает, в частности, при решении актуальных задач физики атмосферы и астрофизики.

Количественные данные о процессах обмена энергией между внутренними степенями свободы молекул и поступательной энергией частиц окружающей среды имеют важное прикладное применение для улучшения параметров существующих молекулярных и химических лазеров. Дальнейшее развитие метода оптического выстраивания и ориентации уровней основного электронного состояния и применение его к различным молекулярным системам может оказаться весьма полезным для определения скорости разрушения и образования данного состояния молекулы в процессах различного рода газофазных химических реакций. Это особенно существенно для молекул, не имеющих постоянного дипольного момента в связи с тем, что к таким системам неприменимы методы инфракрасной спектроскопии.

Диссертация состоит из трех глав.

В первой главе приведен обзор литературных данных по методам оптической накачки основного состояния двухатомных молекул, на основе которого обоснована постановка задачи и выбор метода исследования. Изложено теоретическое рассмотрение процесса оптической накачки при селективном поглощении, методика и техника эксперимента. Приведены результаты, устанавливающие наличие эффекта оптического выстраивания и ориентации ряда определенных колебательно-вращательных уровней  $(V'', J'')$  основного  $X^1\Sigma_g^+$ -состояния молекул  $Na_2, K_2$ .

Вторая глава содержит результаты количественного изучения процесса релаксации уровней основного электронного состояния,

оптически выстроенных в результате поглощения света некогерентной поляризации. Приведены измеренные значения констант и сечений релаксации ряда  $(V'', J'')$ -уровней  $Na_2$  и  $K_2$  при столкновениях с собственными и примесными атомами. Обсуждаются установленные закономерности и механизмы релаксационных процессов.

Третья глава посвящена изучению эффекта Ханле оптически выстроенных  $(V'', J'')$  уровней основного состояния двухатомных молекул. Эффект констатирован для  $Na_2$ ,  $K_2$  и также использован для измерения параметров релаксации в столкновениях с собственными атомами  $Na$  и  $K$ .

На защиту выносятся следующие основные положения, отражающие новые результаты, полученные при исследовании проблемы в данной диссертационной работе:

1. Разработан метод создания и исследования оптического выстраивания и ориентации определенных колебательно-вращательных уровней основного электронного состояния двухатомных молекул средствами лазерно-флуоресцентной спектроскопии; констатированы эффекты оптического выстраивания и ориентации уровней; эффект прямой оптической ориентации обнаружен впервые.

2. Определены и сравнены константы релаксации нескольких оптически выстроенных колебательно-вращательных подуровней  $(v'', J'')$  основного  $X^1\Sigma_g^+$ -состояния молекул  $Na_2$ . Получены значения эффективных сечений процесса релаксации при соударениях с собственными атомами  $Na$ .

3. Определены константы и сечения релаксации оптически выстроенного  $(v'', J'')$   $X^1\Sigma_g^+$ -уровня  $K_2$  при соударениях с собственными атомами  $K$ , а также отношения сечений при соударениях с атомами  $K$ ,  $He$ ,  $Xe$ .

4. Впервые зарегистрирован эффект Ханле на колебательно-вращательном уровне основного электронного состояния двухатом-

ных молекул. Эффект проявлялся в наложении сигнала Ханле оптически выстроенного основного состояния на соответствующий сигнал от возбужденного уровня.

5. По измерениям контура Ханле определены константы и эффективные сечения релаксации когерентности для двух уровней основного электронного состояния  $Na_2$  и  $K_2$  при столкновениях  $Na_2 + Na$ ,  $K_2 + K$ .

Работа выполнена автором в Латвийском ордена Трудового Красного Знамени Государственном университете им. П.Стучки. Экспериментальные результаты получены в период 1973–1977 гг.

Основные результаты работы изложены в научных публикациях /21–31/.



## Г Л А В А I

СОЗДАНИЕ И РЕГИСТРАЦИЯ ОПТИЧЕСКОГО ВЫСТРАИВАНИЯ  
И ОРИЕНТАЦИИ ОСНОВНОГО СОСТОЯНИЯ ДВУХАТОМНЫХ  
МОЛЕКУЛ

## § I.I. Оптическая накачка основного состояния атомов

Оптической накачкой<sup>I</sup>, следуя А.Кастлеру /6/, в настоящей работе будем называть метод создания отличного от термически равновесного распределения заселенностей энергетических состояний под действием светового излучения. В дальнейшем изложении при отсутствии специальных оговорок имеется в виду анизотропная заселенность магнитных подуровней некоторого энергетического уровня, принадлежащего к основному электронному состоянию.

Впервые метод изменения относительных заселенностей подуровней основного состояния в результате поглощения и излучения света резонансной частоты был предложен в 1949 году А.Кастлером /7/, вскоре реализован экспериментально /8/ и в дальнейшем получил широкое развитие, см. обзоры /9-12/, монографию /13/.

Рассмотрим принцип оптической накачки на простейшем при-

---

<sup>I</sup> Не следует смешивать с другим значением термина, понимаемого в смысле оптического возбуждения, т.е. перевода системы в возбужденное состояние.

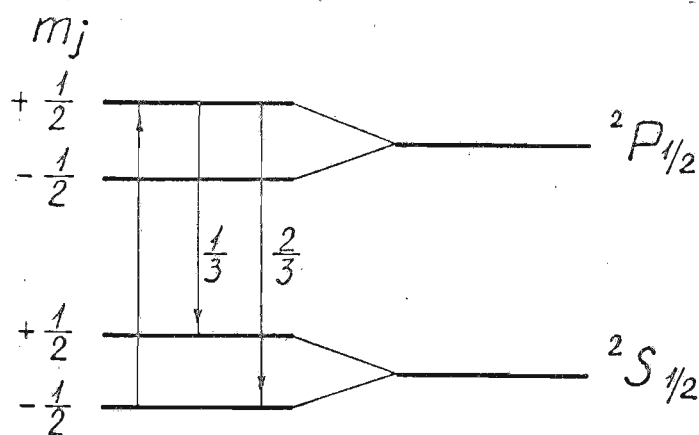


Рис. I.1 Схема оптической накачки  ${}^2S_{1/2}$  -состояния

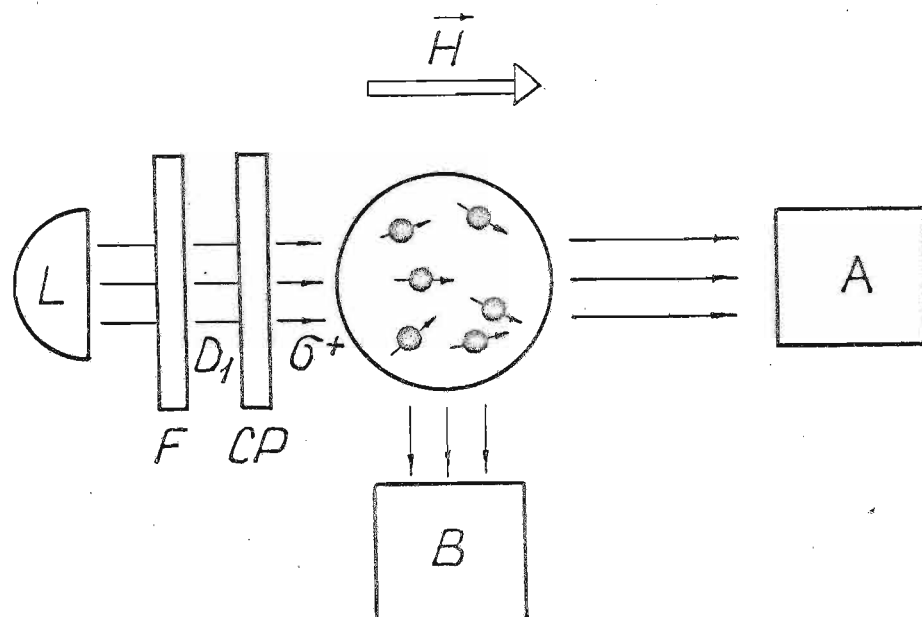


Рис. I.2 Схема простейшего эксперимента по оптической накачке.

$L$  - источник резонансного излучения,  $F$  - фильтр, пропускающий одну из компонент дублета ( $D_1$  - линию),  $CP$  - круговой поляризатор,  $A, B$  - детекторы излучения.

мере основного  ${}^2S_{1/2}$  состояния гипотетического щелочного атома без сверхтонкой структуры. Циркулярно поляризованное оптическое излучение ( $\sigma^+$ -компонента) вызывает переход только с подуровня  $m_j = -\frac{1}{2}$  состояния  ${}^2S_{1/2}$  на подуровень  $m_j = \frac{1}{2}$  состояния  ${}^2P_{1/2}$ , рис. I.1. В то же время атомы подуровня  $\frac{1}{2}$  возбужденного состояния быстро распадаются в процессе спонтанного излучения на оба подуровня  $\frac{1}{2}$  и  $-\frac{1}{2}$  основного состояния с относительными вероятностями, указанными на рисунке. Если вероятность в единицу времени (или скорость) релаксационных переходов между магнитными подуровнями сравнима или меньше, чем скорость поглощения, то основной уровень становится оптически накачанным, то есть атомы будут преимущественно "перекачаны" в состояние  $m_j = \frac{1}{2}$ . Как видно, здесь идет двухступенчатый процесс: сначала селективное по магнитным подуровням  $m_j$  уровня  $j$  поглощение, а затем заселение спонтанным излучением. Различные заселенности уровней  $n_{1/2} \neq n_{-1/2}$  (в общем случае  $n_{m_j} \neq n_{-m_j}$ ) соответствуют преимущественной ориентации спинов вдоль направления возбуждающего луча, совпадающего с осью квантования, рис. I.2. В этом случае система называется оптически ориентированной. Оптическая ориентация возникает за счет передачи части углового момента фотонов поглощающей системе и приводит к появлению отличной от нуля проекции магнитного момента единицы объема на ось квантования.

Если при создании анизотропии нет разницы между заселенностями положительных и отрицательных подуровней с одинаковыми  $|m_j|$ , т.е.  $n_{m_j} = n_{-m_j}$ , то говорят об оптическом выстраивании. Оно чаще всего создается при направленном линейно-поляризованном облучении. Объемный магнитный момент при этом не

возникает.

Оптическая накачка основного состояния может детектироваться как правило двумя способами. Это, во-первых, по изменению коэффициента поглощения света, вызывающего переход с накачиваемого уровня. Действительно, в результате накачки пары в ячейке, рис. 1.2, станут более прозрачными, что зарегистрирует детектор *A*. Второй способ связан с регистрацией изменений света флуоресценции (детектор *B*). Для регистрации могут быть использованы также метод радиочастотного резонанса /10/ и др.

Детальное описание экспериментальных и теоретических результатов по оптической накачке атомов можно найти в обзорах /9-13/ и цитированной там литературе. К настоящему времени разработано много вариантов создания, регистрации и применения метода оптической накачки различного рода атомов, превратившегося в развитую информативную (магнитные свойства, СТС, релаксационные процессы и др.) область атомной спектроскопии, имеющие целый ряд применений в науке и практике, например, создание рекордных по своей чувствительности магнитометров, способных измерять магнитные поля начиная с  $10^{-10}$  Гс.

Естественный интерес представляет распространение метода оптической накачки основного состояния на двухатомные молекулы.

## § 1.2 Обзор методов оптической накачки основного состояния двухатомных молекул и постановка задачи

Приведем основные идеи методов оптической накачки двухатомных молекул в основном электронном состоянии на основании обзора литературных данных.

а) селективное поглощение

Пусть лазерное излучение вызывает переход с уровня  $(v'', J'')$  основного  $X' \Sigma_g^+$  состояния с колебательным числом  $v''$  и вращательным квантовым числом  $J''$  (здесь и далее индекс два штриха означает согласно традиционным обозначениям /14/ принадлежность к основному электронному состоянию, один штрих - к возбужденному) на уровень  $(v', J')$  возбужденного электронного состояния, например,  $B' \Pi_u$ . Такой переход сопровождается высвечиванием прогрессии флуоресценции /14/, см. рис. I.3, изучение которой уже в первых работах по лазерной спектроскопии щелочных молекул (В.Демтредер с сотр. /15/ и Г.Брозда с сотр. /16/ для  $X \leftrightarrow B$  и  $X \leftrightarrow A$  переходов  $Na_2$ , Р.Зеир и др. /17/ для  $X \leftrightarrow B$  переходов  $K_2$ ) позволило расшифровать значения  $(v'', J'')$ ,  $(v', J')$  и определить спектроскопические константы молекул.

Поскольку переход  $(v'', J'') \longrightarrow (v', J')$  возбуждается поляризованным или во всяком случае направленным лазерным лучом, такое поглощение селективно по магнитным подуровням  $M''$  момента количества движения  $\vec{J}''$  из-за зависимости вероятности электрического дипольного перехода от  $M''$ , см., например, /18, 19/.

Магнитные подуровни основного уровня опустошаются в различной мере, что подобно первому этапу оптической накачки атомов, рис. I.1. Однако в отличие от атомов для молекул спонтанные переходы из возбужденного состояния идут на десятки различных колебательно-вращательных уровней основного состояния, рис. I.3, и вероятность заселения исходного уровня обратными спонтанными переходами мала. Если при этом скорость поглощения  $V_p, c^{-1}$ , понимаемая как среднее число актов погло-

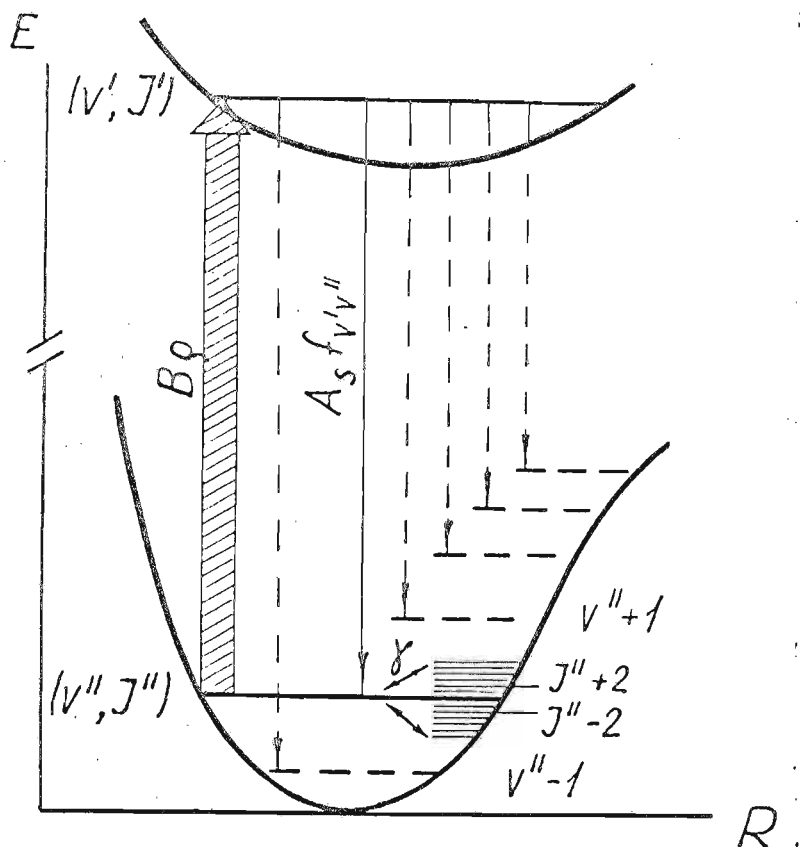


Рис. 1.3 Схема переходов при оптической накачке уровня  $(v'', J'')$  методом селективного поглощения

молекулой в единицу времени, сравнима со скоростью безызлучательных релаксационных переходов,  $\gamma$ , то исходный уровень оказывается, во-первых, имеющим суммарную заселенность меньше термически равновесной, и, во-вторых, имеющим анизотропное стационарное распределение заселенностей по  $M''$ , то есть оптически накачанным. Детектирование эффекта также может вестись по изменениям в поглощении или, что удобнее, молекулярной флуоресценции, возбужденной накачивающим лучом. При этом использование флуоресцентного метода позволяет выбрать любую удобную линию  $v''$ -прогрессии флуоресценции, рис. 1.3, не совпадающую с возбуждающей лазерной линией.

Метод впервые предложен Р.Дралингером и Р.Зеиром в 1969 году /5/ и назван ими оптической накачкой при селективном поглощении. Линейно-поляризованное излучение 488.0 нм аргонового

$Ar^+$  лазера (мощность в непрерывном режиме до 400 мВт) возбуждало  $Q$ -переход ( $v''=3$ ,  $J''=43$ )  $X'\Sigma_g^+$   $\longrightarrow$  ( $v'=6$ ,  $J'=43$ )  $B'\Pi_u$  молекулы  $Na_2$ . Авторами /5/ было зарегистрировано появление нелинейности в зависимости интенсивности флуоресценции от мощности лазерного возбуждения, сопровождавшееся одновременным уменьшением степени линейной поляризации для линий  $Q$ -ветви флуоресценции, что интерпретировалось как проявление оптической накачки уровня (3,43) основного  $X'\Sigma_g^+$ -состояния.

В дальнейшем лазерно-флуоресцентный метод оптической накачки двухатомных молекул при селективном поглощении развит и применен для изучения релаксации в работах /21-31/ по  $Na_2$  и  $K_2$ , составляющих содержание данной диссертационной работы, а также в /32/ для  $Na_2$  в парах, в /33/ для пучка  $Na_2$  (с применением радиочастотного резонанса для исследования СТС), в /34/ для паров йода  $I_2$ . Метод детально изложен в последующих разделах настоящей работы.

б) селективная фотодиссоциация

К селективному по  $M''$  опустошению может привести также процесс фотодиссоциации при направленном линейно поляризованном возбуждении, как указывалось уже в работах Г.Демельта /35/ и Р.Зеира /5/, из-за того, что сечение фотораспада зависит от квантового числа  $M''$ . Оставшиеся молекулы на энергетических уровнях, с которых идет распад, оказываются анизотропно распределенными по  $M''$ , т.е. оптически выстроенными. Такой процесс Г.Демельт /35/ назвал селективной фотодиссоциацией и осуществил в эксперименте на молекулярном ионе водорода в условиях отсутствия столкновений. Детектирование велось по радиочастотному резонансу, вызываемому магнитные дипольные

переходы.

Теоретически и экспериментально селективная фотодиссоциация изучалась недавно Д. Лингом и К. Уилсоном /36/. Авторами классически и квантовомеханически рассчитаны распределения угловых моментов и межъядерных осей в зависимости от параметров процесса, а также угловое распределение продуктов фотораспада. Именно последнее обстоятельство и было подвергнуто экспериментальной проверке при масс-спектрометрическом анализе продуктов фотораспада молекулярного пучка  $JBr$ , облучаемого импульсами линейно поляризованного излучения неодимового лазера (вторая гармоника, длина волны 532.4 нм, поток фотонов до  $10^{19}$  через  $см^2$ ).

Опустошение начального состояния молекул  $J_2$  при фотодиссоциации линией 488.0 нм  $Ar^+$ -лазера наблюдалось в /37/ методом внутривибрационной спектроскопии.

Результаты /36/ указывают, в частности, на возможность использования эффекта для определения типа молекулярного состояния, через которое идет распад, что способствовало бы выяснению механизмов фотодиссоциации при лазерном воздействии на щелочные димеры, изучавшиеся авторами /38/.

Следует, однако, отметить существенные трудности с регистрацией, так как в этом случае выстраивающий основное состояние луч, естественно, не вызывает молекулярной флуоресценции. Требование наличия дополнительного пробного луча, попадающего в полосу поглощения с тех же уровней, которые являются исходными для фотораспада, сильно усложняет методику и до сих пор такая прямая регистрация селективной фотодиссоциации не осуществлена; напомним, что авторы /36/ применили, по их собственному признанию, весьма косвенный способ регистрации эффекта.



## в) другие методы

Рассмотрим способы создания анизотропии по магнитным подуровням  $M''$  основного состояния двухатомных молекул, не связанные с прямым воздействием света на молекулы.

Столкновения ориентированных атомов. Интересным методом, приводящим к ориентации ядерных спинов щелочных молекул, является столкновительный перенос ориентации от оптически ориентированных атомов к двухатомным молекулам /39-46/.

В щелочных атомах ( $Na, K, Rb, Cs$ ), ориентированных методом Кастлера (см. § I.I), из-за сверхтонкого взаимодействия ориентированы также спины ядер. Взаимный перенос ориентации спинов ядер между парамагнитными атомами и диамагнитными  $\Sigma$ -молекулами, которые всегда присутствуют как небольшая примесь к атомам в парах щелочного металла /47/, подобен спиновому обмену. Он рассмотрен теоретически Г.Вебером /45/ по двум столкновительным процессам: а) химическая реакция обмена атом-двухатомная молекула типа  $A + A_2 \rightleftharpoons A_2 + A$  (см. об этом, например, в /48,49/) и б) создание и разрушение молекул в тройных столкновениях в присутствии атомов буферного инертного газа  $Ne$ , т.е.  $A + A + Ne \rightleftharpoons A_2 + Ne$ . Детектирование производится по ЯМР ориентированных молекул, вызывающему резонансное изменение в ориентации ядерных спинов, которые в свою очередь через обратные реакции обмена и распада (а) и (б) изменяют степень ориентации щелочных атомов. Последнее же обстоятельство может быть зарегистрировано с помощью обычной упомянутой в § I.I техники /9-13/, в частности, по резонансным изменениям пропускания света накачки, см. рис. I.4.

Такой на первый взгляд сложный, многоступенчатый механизм создания и регистрации ориентации ядерных спинов свободных мо-

лекул, обнаруженный в известной мере случайно /50/, приводит тем не менее к обычным схемам, экспериментам (рис. I.4), широко используемым для атомов. Метод развит в основном в работах группы Г.цу Путлитца, а также Р.Гупты /39/44/. Он позволяет измерять скорости и сечения реакций (а) и (б) по зависимости ширины ЯМР-сигнала от концентрации атомов, как это было проведено в /39,40/ для  $Cs_2$ ,  $Rb_2$ , в /41,44,46/ для  $Na_2$ , в /42/ для  $K_2$ ; константы внутримолекулярной релаксации; точно измерять ядерные моменты /43,44/ и отсюда определять константы магнитного экранирования и спин-вращательного взаимодействия. Некоторые результаты по столкновительной релаксации будут приведены в дальнейшем.

Выстраивание в сверхзвуковом потоке газа. Как показал Р.Зеир с сотрудниками /51/, при истечении молекул  $Na_2$  в сверх-

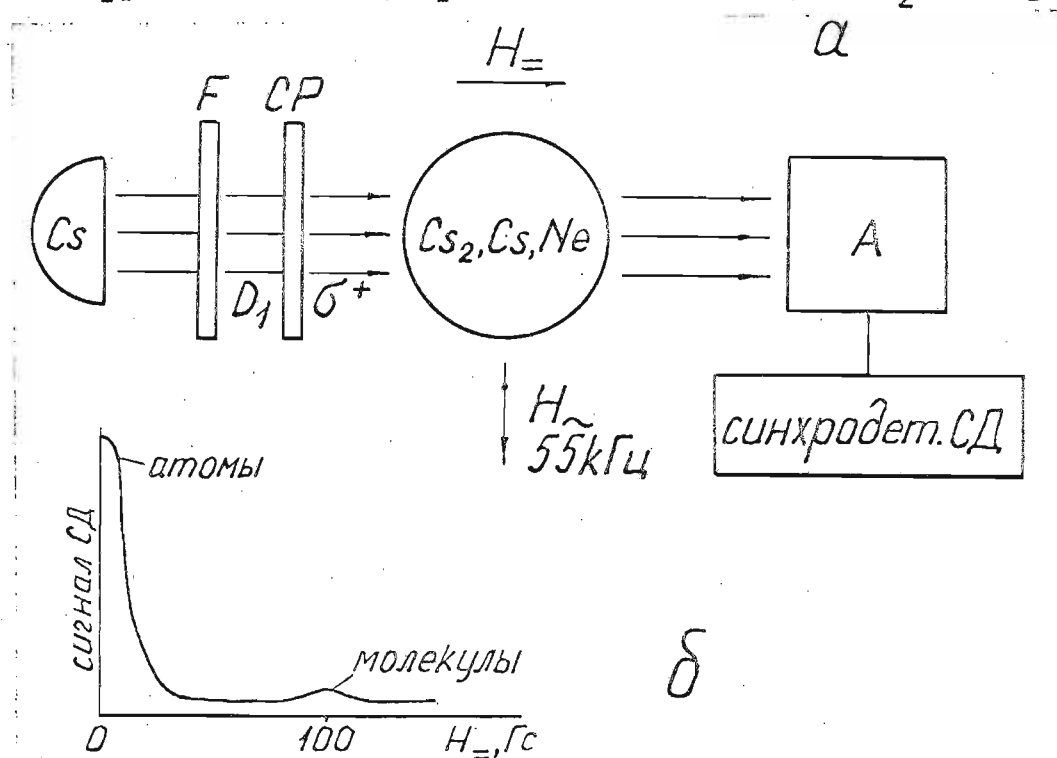


Рис. I.4. Принципиальная схема установки (а) и характерный вид сигнала ЯМР (б) двухатомных щелочных молекул, ориентированных при столкновениях оптически ориентированных щелочных атомов /40/

звуковой струе атомов  $Na$  через узкое сопло анизотропные (то есть имеющие зависящие от взаимной ориентации межмолекулярный потенциал) молекулярно-атомные столкновения приводят к эффекту частичного выстраивания угловых моментов молекулярного ансамбля в пучке относительно оси пучка. Авторами /51/ строится классическая модель явления на основе двух типов столкновений сферически симметричных атомов с аксиально симметричными молекулами. К первому типу относятся неупругие столкновения, приводящие к тому, что межъядерные оси молекул в струе стремятся выстроиться вдоль направления потока атомов и, следовательно, моменты  $\vec{J}$  выстраиваются в плоскости, перпендикулярной потоку. К такому же эффекту приводит второй механизм — химическая реакция обмена атом — димер, так как при этом эффективнее разрушаются молекулы, ось которых перпендикулярна потоку.

В эксперименте /51/ пары натрия образуют сверхзвуковой поток при расширении из печи ( $T = 1025$  K) в вакуум через сопло и диафрагмы. Описание подобной методики можно найти в /53/ и цитированной там литературе. Выстраивание основного состояния  $Na_2$  детектировалось по измерению степени поляризации молекулярной  $B \rightarrow X$  флуоресценции, возбуждаемой пробным лучом  $Ar^+$ -лазера 488.0 нм. Установлено, что отношение числа молекул с векторами  $\vec{J}$ , направленными параллельно и перпендикулярно потоку, составило 2:3. Подчеркнем, что в /51/ лазерный луч использовался не для создания выстраивания, а лишь для его регистрации, и выстраивание поэтому нельзя назвать оптическим.

Интересно отметить, что если в процессе оптической накачки основного состояния при поглощении и фотодиссоциации (§ I.2 а,б) столкновения являются механизмом разрушения анизотропии, то в способах § I.2 в именно через столкновения ани-

зотропия переносится от оптически ориентированных атомов к молекулам либо создается в струе. Следовательно, и в этих случаях изучение накачки дает информацию о столкновительных процессах. Существенным недостатком, однако, является отсутствие селекции по  $(v'', J'')$ -состояниям /51, 52/.

### г) поляризационная спектроскопия

Укажем еще одно появившееся в самое последнее время направление, связанное с оптическим выстраиванием либо ориентацией димеров и заключающееся в использовании возникающей при этом наведенной анизотропии, приводящей к повороту плоскости поляризации пробного излучения. Метод развит Т.Хэншом и А.Шавловым с сотр. /54, 55/ и применен для упрощения и идентификации сложных спектров поглощения двухатомных молекул. Анизотропия индуцировалась одночастотным интенсивным циркулярно поляризованным лазерным излучением, вызывающим переход  $(v'', J'') \rightarrow (v', J')$ . Такая анизотропия изменяет поляризацию широкопольного ( $\Delta \lambda \sim 30$  нм) пробного излучения, являющегося источником для наблюдения спектра поглощения. Если ячейка с парами помещена между скрещенными поляроидами, то в спектре поглощения димеров проявляются лишь те переходы, которые начинаются с оптически накачанного и тем самым как бы "меченого" нижнего уровня, для которых система "просветляется". Такой метод, названный авторами /54, 55/ методом "поляризационных меток нижнего уровня", или поляризационной спектроскопией, уже дал хорошие результаты в предварительном эксперименте по анализу  $X \rightarrow A$  полосы  $Na_2$ , в частности, свидетельствующие о возмущении уровня  $(v' = II, J' = 40) A' \Sigma_u^+$ -состояния, по-видимому, близко расположенным  $^3\Pi$ -термом. Возможность определения релаксационных характеристик методом поляризационной спектроскопии рассмотрена теорети-

чески А.Шалагиным /56/.

д) постановка задачи

Сравнивая изложенные в § 1.2 методы, можно сделать вывод, что метод селективного поглощения лазерного излучения позволяет исследовать оптическую накачку отдельных колебательно-вращательных  $(v'', J'')$ -уровней основного электронного состояния двухатомных молекул. Способ позволяет детектировать эффект оптической накачки по свойствам флуоресценции, возбужденной тем же накачивающим лучом, то есть использовать методы лазерно-флуоресцентной спектроскопии.

Селективное поглощение лазерного излучения, создающее ансамбль оптически накачанных на исходном уровне двухатомных молекул, открывает возможность проведения двух типов исследований таких систем: изучать структуру, т.е. определять различные спектроскопические константы молекул, либо изучать столкновительные процессы.

Одна из идей структурных исследований заключается в применении оптико-магнитных методов, в частности, интерференции вырожденных молекулярных состояний оптически накачанных колебательно-вращательных уровней. Как будет показано в гл. III, при оптической накачке светом когерентной поляризации следует ожидать проявления во флуоресценции эффекта пересечения уровней, в магнитном поле, в частности, эффекта Ханле основных  $(v'', J'')$ -уровней, который не наблюдался до сих пор для двухатомных молекул, см. § 3.1. Применение эффекта открывает возможность определить  $g$ -факторы отдельных  $(v'', J'')$ -уровней двухатомных молекул. Пересечение уровней в сочетании с радиочастотным резонансом позволяет детально исследовать СТС, в частности, измерить

константы электрического квадрупольного и спин-вращательного взаимодействия. Такая информация отсутствует для основных состояний двухатомных молекул; применявшаяся к некоторым молекулам техника изменения траектории молекулярных пучков И.Рамзея /57/ в принципе не позволяет изучать отдельные  $(V'', J'')$ -уровни.

Пожалуй, еще более богатую информацию оптическая накачка селективным поглощением способна дать о процессах релаксации и столкновительных явлениях. Такая информация почти полностью отсутствует для основных уровней гомоядерных молекул, см. §2.1. В частности, могут быть получены данные о релаксации выстраивания и ориентации для отдельных  $(V'', J'')$ -уровней, исследована их зависимость от квантовых чисел  $V''$  и  $J''$ , определены сечения соударений, разрушающих анизотропию. Наблюдение и изучение эффекта Ханле оптически накачанного основного  $(V'', J'')$ -уровня также дает информацию о релаксационных процессах, см. §3.1.

К моменту получения первых экспериментальных результатов настоящей диссертационной работы, т.е. к 1973 году, была известна всего одна публикация /5/, посвященная оптической накачке двухатомных молекул, в которой экспериментально установлено лишь наличие эффекта выстраивания; оптическая ориентация зарегистрирована не была. Стоит привести высказывание французских физиков М.Мелиоре-Марешаль и М.Ломбарди в опубликованной в 1974 г. работе /58/, посвященной исследованию СТС молекулы  $H_2$ , о том, что до сих пор нет сообщений об однозначном эксперименте по оптической накачке двухатомных молекул.

Приведенные соображения обосновывают постановку задачи настоящей диссертационной работы: исследование и развитие метода оптической накачки двухатомных молекул при селективном поглощении лазерного излучения как некогерентной, так и когерентной (эффект Ханле) поляризации и применения для изучения

параметров и закономерностей процессов релаксации выстраивания определенных колебательно-вращательных уровней основного  $\chi^1 \Sigma_g^+$  состояния  $Na_2$  и  $K_2$ . Выбор щелочных димеров в качестве объекта исследования обоснован в разделе "Введение". Поставленную задачу можно разделить на следующие этапы:

- 1) развить метод оптической накачки отдельных  $(v'', J'')$ -уровней основного электронного состояния двухатомных молекул;
- 2) выявить эффект выстраивания и ориентации ряда  $(v'', J'')$  состояний  $Na_2$  и  $K_2$ ;
- 3) определить количественные характеристики релаксации анизотропной заселенности ряда  $(v'', J'')$   $\chi^1 \Sigma_g^+$ -состояний  $Na_2$  и  $K_2$  по магнитным подуровням;
- 4) зарегистрировать и изучить эффект Ханле для оптически выстроенного уровня  $(v'', J'')$  основного состояния двухатомных молекул;
- 5) определить количественные характеристики релаксации когерентности  $(v'', J'')$   $\chi^1 \Sigma_g^+$  -состояний  $Na_2$  и  $K_2$ .

### § I.3 Теоретическое описание оптической накачки

( $|JM\rangle$  -представление)

а) о б с у ж д е н и е т е о р е т и ч е с к и х  
м о д е л е й

Наиболее последовательное описание оптической накачки атомов производится в аппарате матриц плотности системы, развитом Ж.Барра /59,60/. При этом во многих случаях удобно пользоваться формализмом неприводимых тензорных операторов /61,62/, однако для двухатомных молекул в условиях больших угловых моментов  $J = 17-99$  последовательное применение такого формализма весьма затруднено. По этой причине в работе использовались два подхода.

Для рассмотренного в настоящем параграфе случая отсутствия магнитного поля решалось балансное уравнение для диагональных элементов матрицы плотности, имеющих смысл заселенности магнитных подуровней  $M$  момента  $J$  в  $|JM\rangle$ -представлении.

Другой подход, рассмотренный в §1.4 и §3.2, развит М.Дюкло /63/ для случая лазерной оптической накачки уровней в "классическом" пределе больших угловых моментов  $J$ , причем классические представления сформулированы им в аппарате квантовой механики на основе работы /64/, используя так называемое  $|\Omega\rangle$ -представление. Такой метод позволяет решать задачу поведения системы в ненулевых магнитных полях (эффект Ханле, см. гл.III), а также связать полученные результаты с формализмом неприводимых тензорных операторов, см. § 1.4 г., § 3.2б.

Во всех случаях релаксация системы описывалась с учетом конкретной (в условиях производимых экспериментов) модели релаксации.

Кроме того, принято приближение возбуждения "квазиширокой" линией лазера, имеющей много близко расположенных мод внутри доплеровского профиля молекулярного перехода, при котором возбуждение молекулы не зависит от ее скорости /63,65-66/. Если принять, что, во-первых, спектральная ширина лазера,  $\Delta$ , много больше доплеровской ширины  $\Delta \nu_D$  молекулярного перехода и, во-вторых, удвоенная естественная ширина перехода в молекуле  $2\Gamma$  больше или сравнима с расстоянием между соседними лазерными модами  $\Delta \omega$ , то соседние "провалы" Беннета /68/, выжженные модами в доплеровском профиле, перекрываются, см. рис. I.5, и возбуждение перестает зависеть от скорости частиц. Оценки для конкретных случаев, например,  $Na_2 (X \rightarrow B)$ , дают  $\Delta \sim 8$  ГГц,  $\Delta \nu_D \sim 1,5$  ГГц,  $2\Gamma \sim 60$  МГц и  $\Delta \omega \sim 70$  МГц. Учитывая также частотную



нестабильность "свободно бегущих" мод, приведенные оценки показывают, что, как полагает также М.Дюкло /65/, условия возбуждения близки к случаю "квазиширокой" линии, и в этом случае внутренние переменные ( $v''$ ,  $J''$ ) отделяются от внешней переменной - скорости частиц.

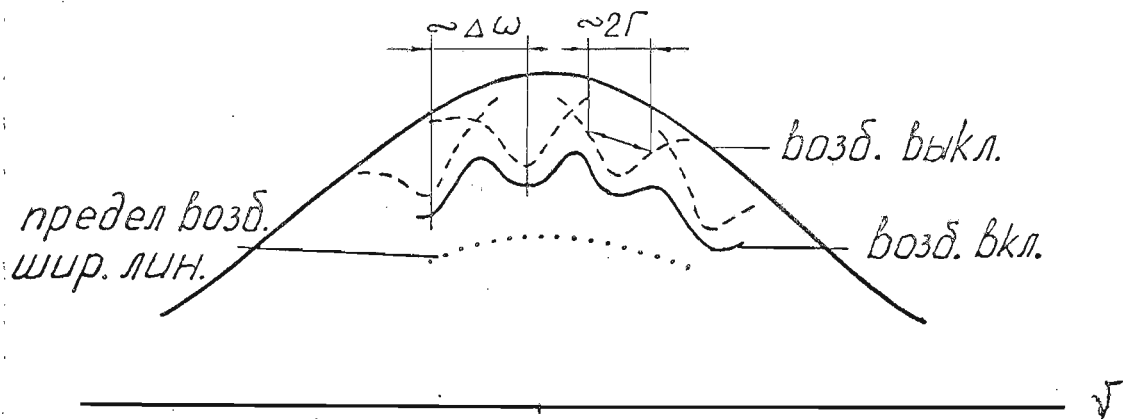


Рис. I.5 Распределение молекул по скоростям  $v$  и приближение возбуждения квазиширокой линией /66/

$\Delta\omega$  - расстояние между соседними модами лазера,  $\Gamma$  - естественная ширина молекулярного перехода.

Приближение широкой линии позволило М.Дюкло развить подход к описанию различного рода нелинейных явлений, возникающих при лазерной оптической накачке, не использующий разложение по лазерному полю методом теории возмущений и приводящий к лучшему по сравнению с теорией возмущений согласию с экспериментом, в частности, на атомах  $Ne$ , см. /63/, обзоры /66,67/. В настоящей работе теоретическое рассмотрение как в  $|J, M\rangle$ -представлении (§ I.3), так и в  $|\Omega\rangle$ -представлении

(§ I.4, § 3.2) проведено в приближении широкой линии возбуждения.

б) уравнения баланса

Пусть ось квантования направлена вдоль вектора  $\vec{E}$  при линейно-поляризованном возбуждении или по направлению  $\vec{k}$  светового луча при циркулярно-поляризованном или естественном возбуждении. В такой системе координат поляризация света некогерентна /62/, матрица возбуждения  $F_{ML}$  диагональна и величина поглощенного света, а также интенсивность и степень поляризации флуоресценции зависят только от распределения населенностей магнитных подуровней /62,69/.

Пусть поглощение света вызывает оптический переход с уровня  $(V'', J''=J, M''=M)$  основного состояния на уровень  $(V', J', M')$  возбужденного состояния. Запишем уравнение для диагональных элементов матрицы плотности  $\hat{\rho}_{MM}$  (здесь мы для краткости опускаем индекс два штриха)

$$\dot{\hat{\rho}}_{MM} = V\rho F_{MM} \hat{\rho}_{MM} + \lambda_{MM} - \gamma_{MM} \hat{\rho}_{MM}, \quad (I.I)$$

где  $\hat{\rho}_{MM}$  - диагональный элемент матрицы плотности уровня  $(V'', J'')$  основного электронного состояния молекулы,  $V\rho$  - скорость поглощения (вероятность поглощения в единицу времени), пропорциональная плотности мощности  $\rho$  возбуждающего света,  $F_{MM}$  - диагональный элемент матрицы поглощения, пропорциональный (для электрического дипольного перехода) квадрату коэффициента Клебша-Гордана  $C(J1J; M\Delta M) \equiv C_{MM'}^{J'} \equiv C_{MM+\Delta M}^{J+\Delta J}$ , где  $J, M$  - квантовые числа основного уровня,  $\Delta J$  и  $\Delta M$  - их изменения в процессе излучательного перехода, ограниченные правилами отбора  $\Delta J = 0, \pm 1$ ;  $\Delta M = 0, \pm 1$ . Член  $\gamma_{MM} \hat{\rho}_{MM}$ , где  $\gamma_{MM}$  - скорость релаксации, описывает опустошение  $M$ -го

уровня релаксационными процессами, а  $\lambda_{MM}$  - заселение обратными релаксационными процессами, причем принимается  $\lambda_{MM} = \gamma_{MM} \sigma_{MM}^{(0)}$ , где  $\sigma_{MM}^{(0)}$  совпадает с заселенностью уровня  $M$  в отсутствие накачки.

Такое описание процесса релаксации проведено в следующей модели. В интервале энергии  $\Delta E \ll kT$  от исходного  $(v'', J'')$ -уровня, рис. I.3, расположено большое количество энергетических уровней, которые "питают" селективно опустошенный уровень в процессах обмена энергии. Обмен энергии может происходить как в результате неупругих столкновений, так и в результате пространственной диффузии накачанных молекул из-под лазерного луча и ненакачанных молекул под луч /32/, см. подробнее в § 2.1. Так как "питающих" уровней в интервале термических энергий  $kT$  много, то можно принять, что их заселенность не изменяется в процессе оптической накачки, оставаясь равной  $\sigma_{MM}^{(0)} = n_0 = n_{v'', J''} / (2J'' + 1)$ , где  $n_{v'', J''}$  - термически равновесная заселенность уровня  $(v'', J'')$ . Такая модель релаксации подтверждается экспериментально, см. § 2.1, и позволяет описывать процесс одной не зависящей от  $M$  константой релаксации  $\gamma_{MM} = \gamma$ . Следует подчеркнуть, что все эксперименты выполнены в условиях отсутствия пленения излучения.

Уравнение (I.1) записано для случая, когда можно пренебречь заселением исходного уровня обратными спонтанными и вынужденными переходами и совпадает с уравнением баланса из /5/, если принять  $\sigma_{MM} \equiv n_M$ :

$$\dot{n}_M = -V\rho C_{MM'}^{J'} n_M + \gamma(n_0 - n_M) \quad (I.2)$$

Легко получить стационарное решение (I.2) в виде

$$n_M = n_0 / (1 + x C_{MM'}^{J'}) \quad (I.3)$$

где введен безразмерный параметр  $x = B\rho/\gamma$ , называемый параметром накачки, который характеризует эффективность процесса.

Запишем более полную систему уравнений баланса /25/, учитывающую спонтанные и вынужденные переходы.

$$\dot{n}_M = -B\rho(C_{MM'}^{J'}) (n_M - n_M') + \gamma(n_0 - n_M) + A_S f_{V'V''} [(C_{MM}^{J'}) n_M' + (C_{MM+1}^{J'}) n_{M+1}' + (C_{MM-1}^{J'}) n_{M-1}'] \quad (I.4)$$

В уравнении первый член описывает опустошение и заселение уровня при поглощении и вынужденном испускании, а последний член — заселение при обратных спонтанных переходах;  $A_S$  — скорость спонтанного распада верхнего  $(V', J')$ -уровня,  $f_{V'V''}$  — фактор Франка-Кондона перехода  $V' \rightarrow V''$ , рис. I.3. При достаточно больших  $J' \geq 17$  и учитывая также, что в наших случаях из-за  $f_{VV'} \ll 1$ , см. Приложение I, вклад спонтанных переходов в заселение исходного уровня невелик, с вполне допустимой погрешностью можно принять  $n_{M+1}' \approx n_{M-1}' \approx n_M'$  для магнитных подуровней верхнего  $(V', J')$ -состояния. Действительно, при этом последний член (I.4), который сам вносит вклад  $\sim 0,05\gamma n_M$ , вычисляется с точностью не хуже, чем 0,1. Учитывая, что при таком введении скоростей  $B\rho$  и  $A_S$  сумма коэффициентов при  $n_M'$  в квадратных скобках равна единице, уравнение (I.4) вместе с уравнением для заселенностей  $n_M'$  возбужденного уровня образует систему

$$\left. \begin{aligned} \dot{n}_M &= -B\rho C_{MM'}^{J'} (n_M - n_M') + \gamma(n_0 - n_M) + A_S f_{V'V''} n_M' & (I.5)' \\ \dot{n}_M' &= -B\rho C_{MM'}^{J'} (n_M' - n_M) - A n_M' & (I.5)'' \end{aligned} \right\}$$

В (I.5)''  $A$  есть суммарная скорость распада, включающая также безызлучательные переходы. Стационарное решение (I.5) имеет вид

$$n_M = \frac{n_0}{1 + x C_{MM'}^{J'} \cdot \frac{A - A_S f_{V'V''}}{A + B\rho C_{MM'}^{J'}}} \quad (I.6)$$

В случае, когда выполняется условие

$$V\rho/A \leq V\rho/A_S \ll 1, \quad (I.7)$$

вынужденными переходами можно пренебречь, и (I.6) переходит в

$$n_M = \frac{n_0}{1 + \chi C_{MM'}^{J'} (1 - f_{V'V''})} \quad (I.8)$$

Отсюда видно, что анизотропная заселенность  $M$ -подуровней, т.е. оптическая накачка, обусловлена зависимостью от  $M$  факторов ( $C_{MM'}^{J'}$ ), приведенных в [18, 19, 70].

Эффект начинает заметно проявляться, когда  $\chi \sim 1$ , т.е.

$V\rho \sim \gamma$ , а отсюда выполнение условия (I.7) сводится к  $A_S \gg \gamma$ . Значит, если скорость спонтанного распада верхнего ( $V', J'$ )-уровня значительно превышает суммарную скорость релаксации  $\gamma$ , вынужденными переходами можно пренебречь. Практически именно такой случай имеет место для  $X \rightleftharpoons B$  переходов в двухатомных молекулах щелочных металлов, где  $A_S \geq 10^8 \text{ c}^{-1}$ , см. Приложение I. Величина  $\gamma$  имеет порядок  $10^6 \text{ c}^{-1}$ , как установлено в настоящей работе. Следует отметить, что для случая оптической накачки молекул йода при  $X \rightarrow B$  поглощении [34], величины  $\gamma \sim A_S$ , так как  $A_S \sim 10^6 \text{ c}^{-1}$ , и требуемое для создания накачки условие  $V\rho \sim \gamma$  приводит к  $V\rho \sim A_S$ . В этом случае уже нельзя пренебречь вынужденными переходами, как это сделали Л.Уолл и др. в работе [34], и их подход представляется некорректным.

Рассмотрим выражение (I.8). В литературе (Р.Дралингер и Р.Зеир [5]) рассмотрен лишь случай линейно-поляризованного возбуждения и  $Q$ -перехода. Выражения для  $n_M$  при различных состояниях поляризации возбуждающего света для различных ветвей переходов получены нами в [25] и приведены в табл. I.I. Результаты рассчитанного для условий  $\chi = 2$ ,  $J = 10$  распределения  $n_M$  иллюстрируются на рис. I.6. При отсутствии возбуждающего излучения все магнитные подуровни  $M$  углового момента  $J$  равно-

заселены, рис. I.6г. В случае  $Q$ -перехода коэффициент  $C_{JM'}^{J'} = M^2/J(J+1)$ , и, так как  $n_M = n_{-M}$ , уровень оптически выстроен, см. рис. I.6а, табл. I.1а. В случае рис. I.6б и табл. I.1б для  $P$ -, т.е.  $J' = J-1$ , либо  $R$ -, т.е.  $J' = J+1$ , поглощения линейно-поляризованного света основной уровень также оптически выстроен, однако в отличие от  $Q$ -поглощения преимущественно заселены магнитные подуровни вблизи  $\pm J$ , причем уровни  $M = \pm J$  вообще не опустошаются, т.к. для них  $C_{JM'}^{J'} = 0$ . В векторной модели это означает, что в случае (а) вектора  $\vec{J}$

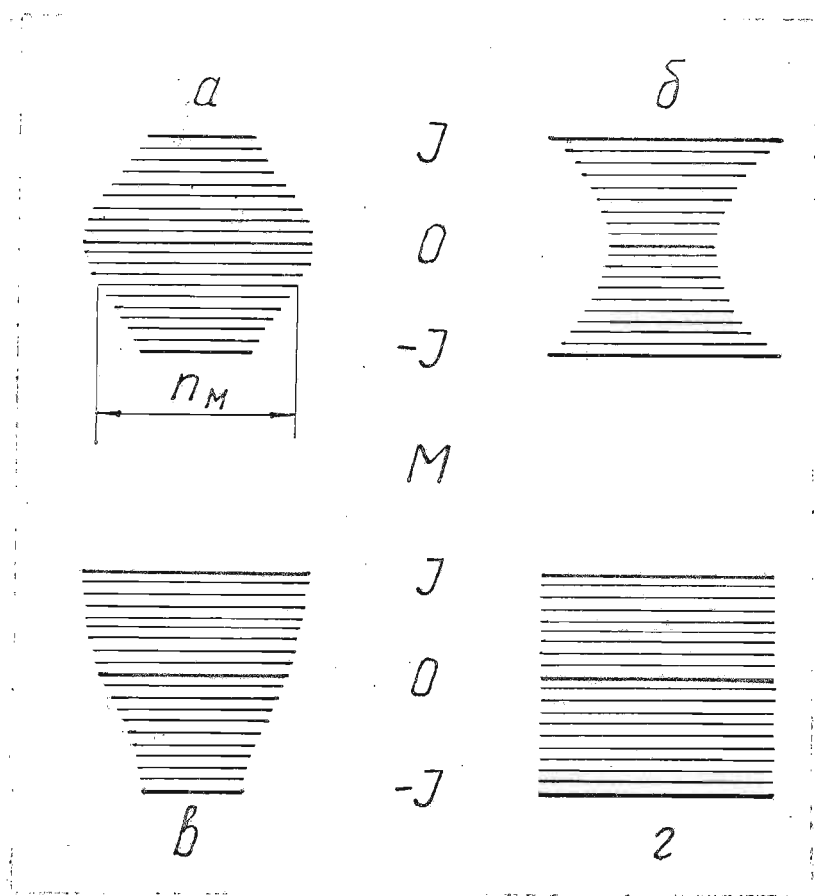


Рис. I.6 Распределение заселенностей  $n_M$  магнитных подуровней  $M$  основного состояния, рассчитанное по формулам из табл. I.1 для  $J = 10$ ,  $\chi = 2$ .  
 (а) - линейно поляризованное  $Q$ -возбуждение,  
 (б) - линейно поляризованное  $P$ -возбуждение,  
 (в) - циркулярно-поляризованное  $P$ -возбуждение,  
 (г) - отсутствие возбуждения. Длина горизонтальных отрезков соответствует  $n_M$ .

имеют преимущественное направление, перпендикулярно вектору  $\vec{E}$  возбуждающего излучения, см. рис. I.7, а в случае (б) — параллельно  $\vec{E}$ .

В случае рис. I.6в имеет место  $n_M \neq n_{-M}$ , т.е. система оптически ориентирована. Вектора  $\vec{J}$  преимущественно ориентированы вдоль оси квантования  $OZ$ , см. рис. I.8.

в) выражения для интенсивностей и степеней поляризации флуоресценции

Интенсивность флуоресценции с верхнего уровня  $(j', J')$ , см. рис. I.3, при заданном состоянии поляризации возбуждения  $(i)$  и наблюдения  $(j)$  определяется (/18,70/) выражением

$$I_{ij} = V_p \sum_{M=J}^{J'} (C_{MM'}^J)_i (D_{M'M}^{J'})_j n_M \quad (I.9)$$

где  $(C_{MM'}^J)_i$  и  $(D_{M'M}^{J'})_j$  есть вероятности поглощения и излучения для электрических дипольных переходов (совпадающие с фактором  $(\psi_x)^2_{JM; J'M'}$  из работы /70/ с точностью до статвеса  $1/(2J+1)$ , включенного в  $V_p$ ). Отметим, что в (I.9) выделена в явном виде лишь зависимость интенсивности данного перехода от квантовых чисел  $M$ ; остальные факторы, такие как сила осцилляторов электронного перехода, факторы Франка-Кондона и Хенля-Лондона /71/ включены в  $V_p$ .

Конкретные выражения интенсивностей и степеней поляризации либо циркулярности для различных случаев сведены в табл. I.I /25/.

Пусть линейно-поляризованное возбуждение вызывает  $Q1, Q1$  переход (стрелка, направленная вверх, означает поглощение, вниз — излучение); регистрируется одна из линий серии флуоресценции, причем наблюдение ведется в направлении, перпендикулярном возбуждающему лучу, рис. I.7. Рассчитаем интенсивность

$I_{\parallel} \equiv I^{\pi}$  по (I.9); коэффициенты  $C_{MM}^J = D_{MM}^J = M^2/J(J+1)$ :

$$I_{\parallel} = V\rho \sum_{M=-J}^J \frac{M^4}{J^2(J+1)^2} \cdot \frac{n_0}{1 + \chi M^2/J(J+1)}, \quad (\text{I.10})$$

где для краткости  $n_M$  вычислено по (I.3).

Подобным образом для  $I_{\perp} \equiv I^{\sigma}$ :

$$I_{\perp} = V\rho \sum_{M=-J}^J C_{MM}^J (D_{M,M-1} + D_{M,M+1}) n_M, \quad (\text{I.11})$$

где  $D_{M,M\pm 1}^J = (J \mp M)(J \pm M + 1)/2J(J+1)$ . Рассчитанная по (I.10,11) с помощью ЭВМ зависимость  $I_{\parallel}$  и  $I_{\perp}$  от  $\rho$ , приведенная на рис. I.9, показывает отклонение от линейного закона.

Линейной зависимости соответствуют пунктирные прямые  $I_{\parallel}^{(0)}$  и  $I_{\perp}^{(0)}$ , полученные из (I.10,11) подстановкой  $\chi = 0$

Для количественной характеристики нелинейной зависимости удобно ввести параметр нелинейности  $\chi_{\parallel,\perp} = I_{\parallel,\perp} / I_{\parallel,\perp}^{(0)}$ , зависящий только от  $\chi = V\rho/\delta$ , рис. I.10. Из рис. I.9,

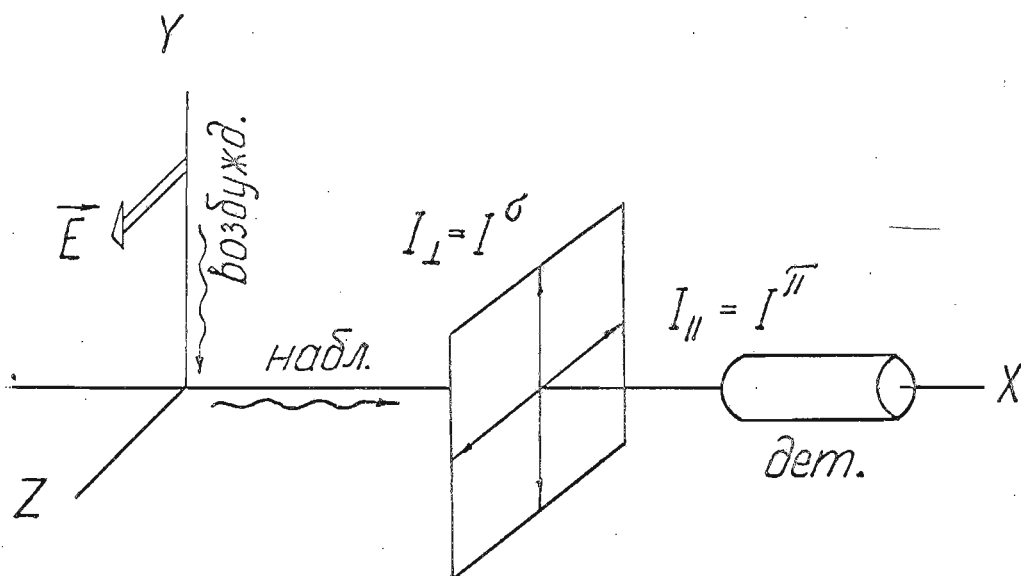


Рис. I.7 Схема возбуждения и наблюдения для измерения степени линейной поляризации флуоресценции.



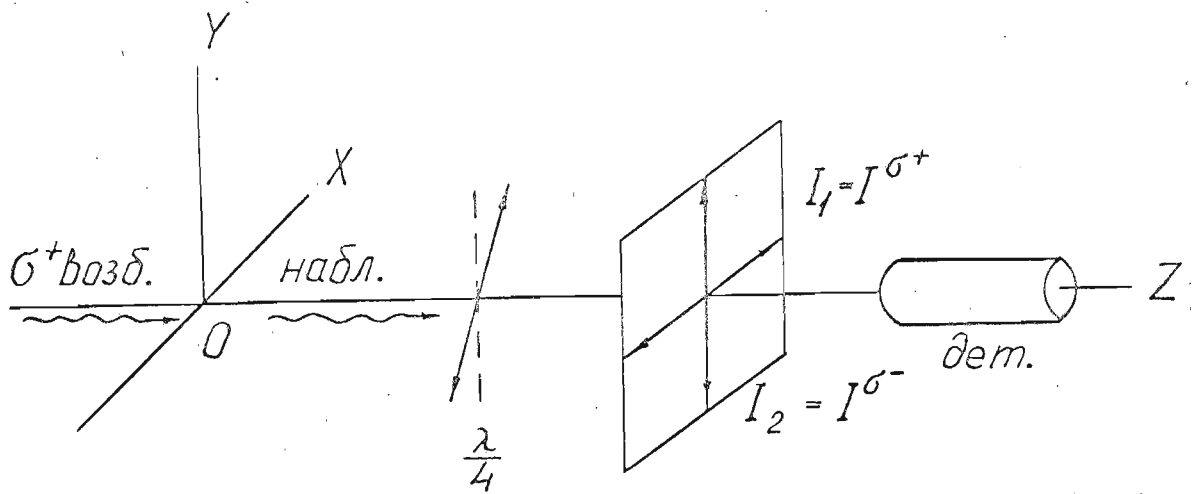


Рис. 1.8 Схема возбуждения и наблюдения для измерения степени циркулярности флуоресценции.

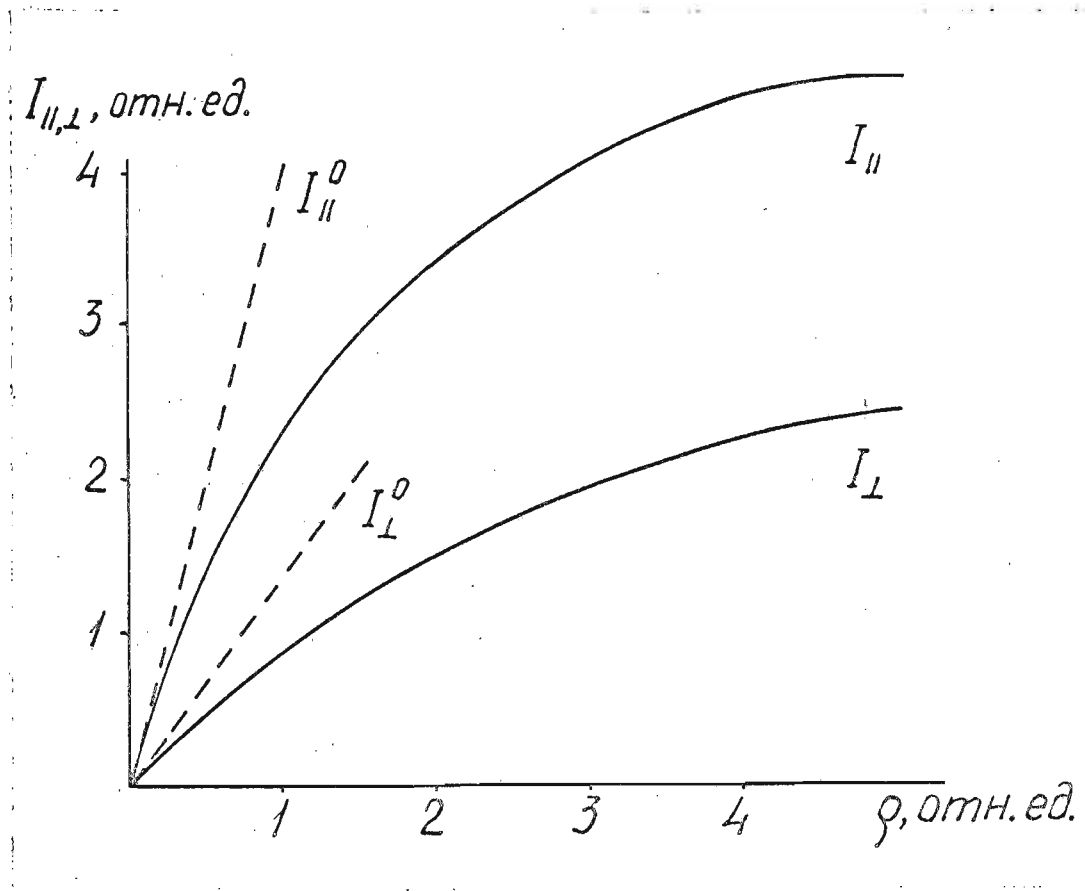


Рис. 1.9 Зависимость интенсивности  $I_{||}, I_{\perp}$  флуоресценции от плотности мощности возбуждения  $\rho$ .

I.10 видно, что зависимость  $I_{\parallel}(\rho)$  насыщается быстрее, чем  $I_{\perp}(\rho)$ , что есть проявление анизотропного распределения  $n_M$  (рис. I.6a), т.е. оптического выстраивания  $(v'', J'')$ -уровня. Естественно поэтому, что степень поляризации, определяемая как  $P = (I_{\parallel} - I_{\perp}) / (I_{\parallel} + I_{\perp})$ , уменьшается с ростом параметра накачки  $x = B\rho/\gamma$ , рис. I.11; выражение для расчета приведено в табл. I.1a. При  $x \rightarrow 0$  формула переходит в обычное выражение /18/, которое в пределе  $J \rightarrow \infty$  равно 0.5. Расчеты показали (как отмечали также авторы/5/), что в случае  $Q\uparrow, Q\downarrow$ -ветви значения  $P$  практически не зависят от  $x$  уже для  $J \geq 5$ . В случае  $P\uparrow, P\downarrow$ -ветви молекулярного перехода  $(J \rightarrow J-1 \rightarrow J)$ , и  $P\uparrow R\downarrow$ -ветви  $(J \rightarrow J-1 \rightarrow J-2)$  рассчитанные по формулам табл. I.1б значения степени линейной поляризации как функции параметра  $x$  приведены на рис. I.12 для нескольких встречавшихся в эксперименте значений квантовых чисел  $J$ . Здесь "классический" предел  $J \rightarrow \infty, x \rightarrow 0$  приводит к значениям  $P = 1/7$  /18/. Значения параметра нелинейности  $\chi_{\parallel}(x)$  приведены на рис. I.13.

В случае циркулярно-поляризованного возбуждения ( $\sigma^+$ -компонента) при продольном направлении наблюдения флуоресценции вдоль возбуждающего луча, рис. I.8, рассчитывались значения степени циркулярности  $C = (I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}) / (I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-})$ , табл. I.1в, приведенные на рис. I.14 для  $P\uparrow, R\downarrow$  переходов; степень циркулярности отрицательна, "классический" предел - 5/7. На рис. I.15 представлены значения  $C(x)$  для  $P\uparrow, P\downarrow$ -переходов. Пунктирной кривой рис. I.14 изображены значения степени оптической ориентации основного состояния  $V$ , определяемой выражением /6/:

$$V = \frac{\langle M \rangle}{\sqrt{J(J+1)}} = \frac{\sum_{M=-J}^J M n_M}{\sum_{M=-J}^J n_M} \quad (I.12)$$

Табл. I.I Выражения для заселенностей  $n_M$ , степеней поляризации и циркулярности флуоресценции.

Тип возбуждающего перехода	Заселенность магнитных подуровней $n_M$	Наблюдение	Степень поляризации $P$ либо циркулярности $C$		
			$x \neq 0$	$x = 0$	$x = 0$ $J \rightarrow \infty$
а) $Q1$ ; линейно-поляризованное возбуждение ( $\pi$ )	$\frac{n_0}{1 + x \frac{M^2}{J(J+1)}}$	поперечное, рис. I.7	$P_{Q1, Q1} = \frac{\sum_{M=-J}^J \frac{3M^4 - J(J+1)M^2}{1 + x \frac{M^2}{J(J+1)}}}{\sum_{M=-J}^J \frac{M^4 + J(J+1)M^2}{1 + x \frac{M^2}{J(J+1)}}}$	$\frac{(2J-1)(2J+3)}{8J^2 + 8J - 1}$	$\frac{1}{2}$

Продолжение табл. I.I

<p>б) <math>P_1</math> ; линейно-поляризованное возбуждение (<math>\mathcal{L}</math>)</p>	$\frac{n_0}{1 + \alpha \frac{J^2 - M^2}{2J^2 - J}}$	<p>поперечное, см. рис. I.7</p>	$P_{P_1, P_1} = \frac{\sum_{M=-J}^J \frac{(J^2 - M^2)(-3M^2 + J^2 - J)}{1 + \alpha \frac{J^2 - M^2}{2J^2 - J}}}{\sum_{M=-J}^J \frac{(J^2 - M^2)(-M^2 + 3J^2 + J)}{1 + \alpha \frac{J^2 - M^2}{2J^2 - J}}}$	$\frac{(J-1)(2J-3)}{14J^2 + 5J + 1}$	$\frac{1}{7}$
<p>в) <math>P_1</math> ; циркулярно-поляризованное возбуждение (<math>\mathcal{G}^+</math>)</p>	$\frac{n_0}{1 + \alpha \frac{(J-M)(J-M-1)}{2(2J^2 - J)}}$	<p>продольное, рис. I.8</p>	$P_{P_1, P_1} = \frac{\sum_{M=-J}^J \frac{(J-M)(J-M-1)(2J-3)(M+1)}{1 + \alpha \frac{(J-M)(J-M-1)}{2(2J^2 - J)}}}{\sum_{M=-J}^J \frac{(J-M)(J-M-1)[(J-1)(J-2) + (M+1)^2]}{1 + \alpha \frac{(J-M)(J-M-1)}{2(2J^2 - J)}}}$	$-\frac{5}{7}$	$-\frac{5}{7}$
			$P_{P_1, R_1} = \frac{\sum_{M=-J}^J \frac{(J^2 - M^2)(-3M^2 + J^2 - J)}{1 + \alpha \frac{J^2 - M^2}{2J^2 - J}}}{\sum_{M=-J}^J \frac{(J^2 - M^2)[-M^2 + (3J-4)(J-1)]}{1 + \alpha \frac{J^2 - M^2}{2J^2 - J}}}$	$\frac{1}{7}$	$\frac{1}{7}$

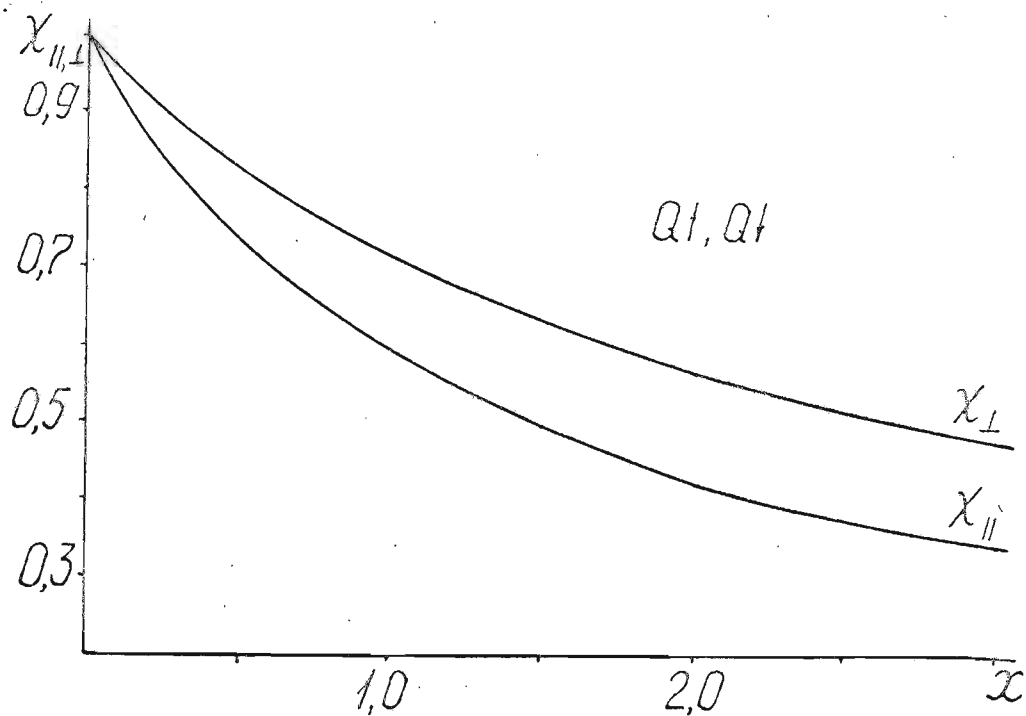


Рис. I.10 Зависимость параметра нелинейности  $\chi_{||, \perp}$  от параметра оптической накачки  $x$ .

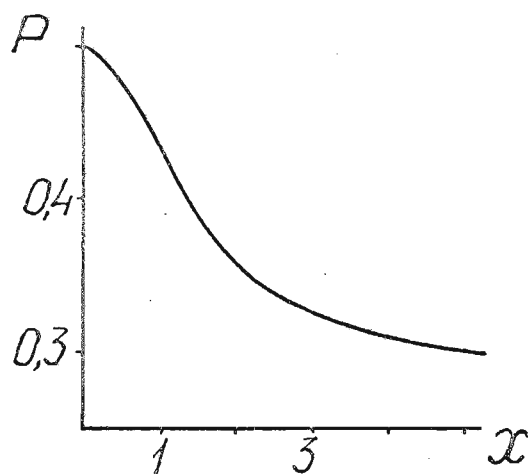


Рис. I.11 Зависимость степени линейной поляризации  $Q1, Q1$  - флуоресценции  $P$  от параметра накачки  $x$ .

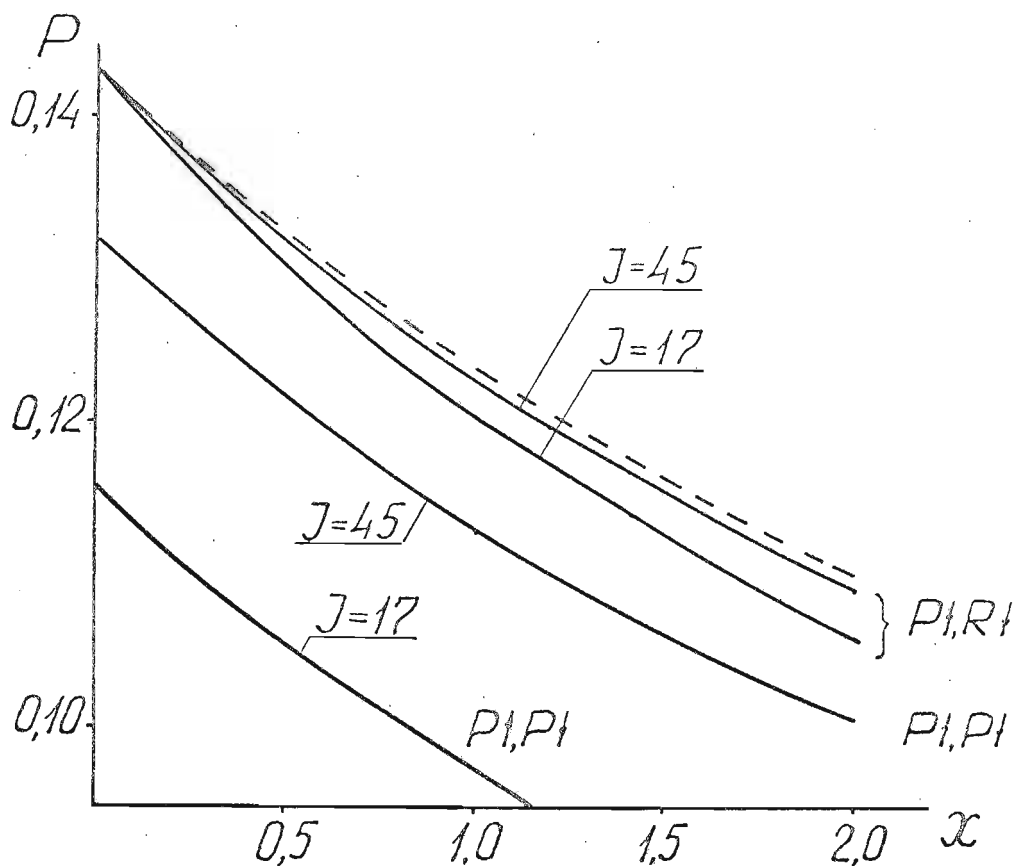


Рис. I.12 Зависимость степени линейной поляризации  $P$  от параметра  $x$ , рассчитанная для  $P \uparrow, P \downarrow$  и  $P \uparrow, P \downarrow$  переходов по формулам табл. I.10.

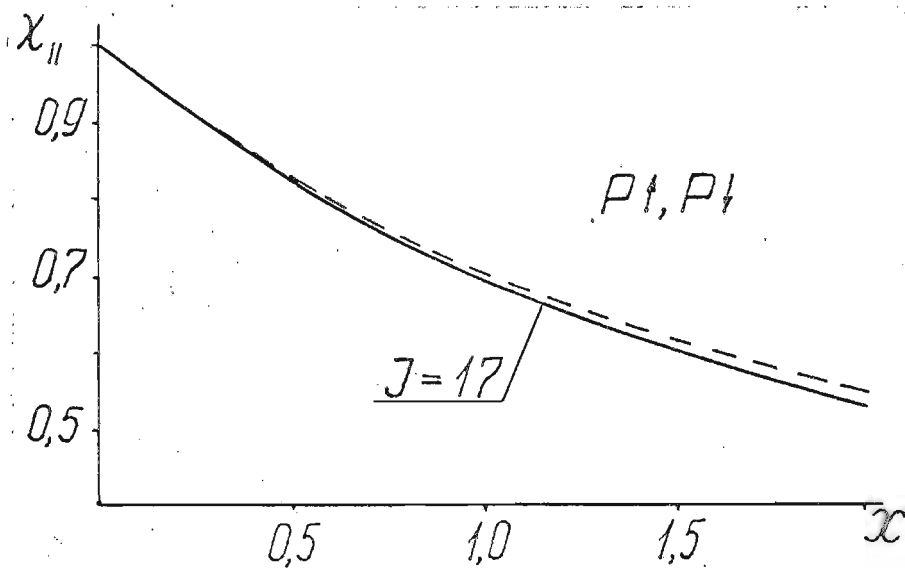


Рис. I.13 Зависимость параметра нелинейности  $\chi_{||} = I_{||}(x)/I_{||}^{(0)}$  от параметра накачки  $x$ .

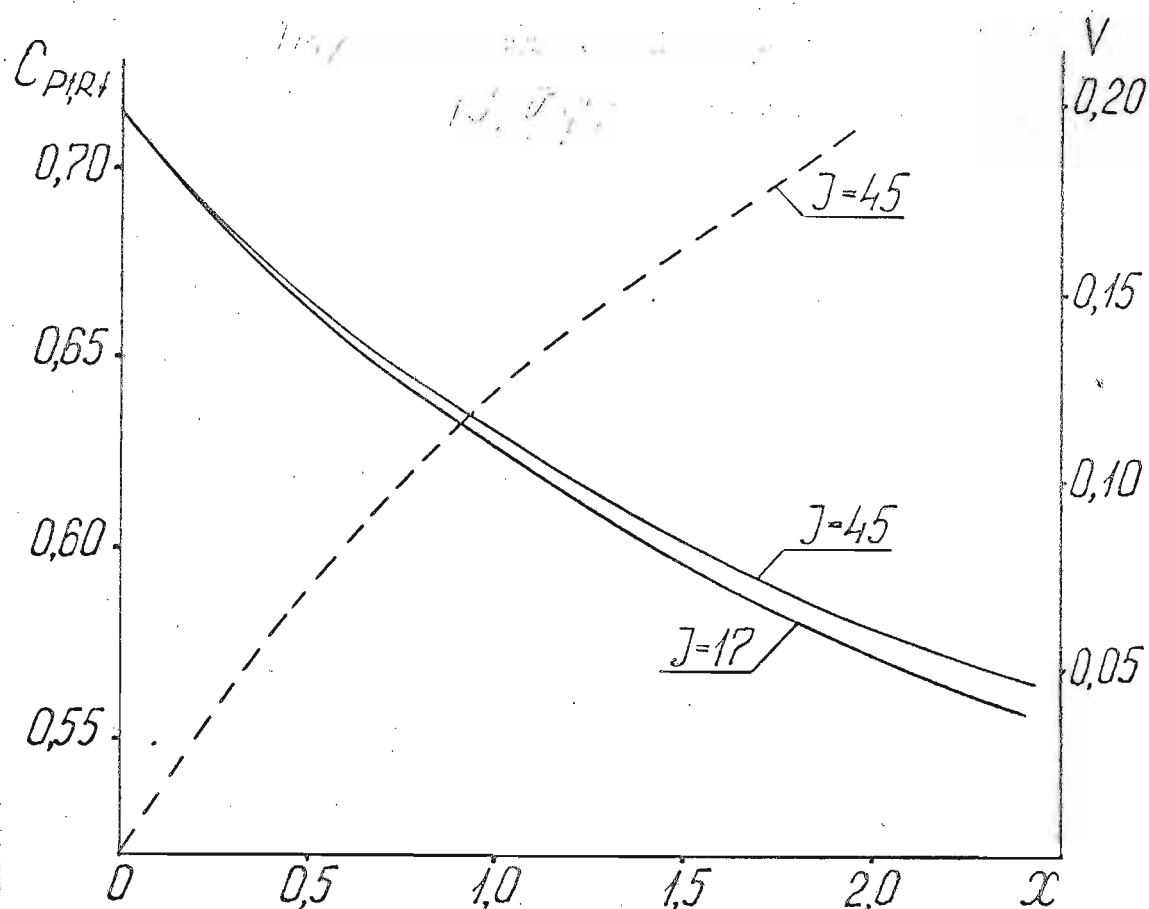


Рис. I.14 Зависимость степени циркулярности флуоресценции  $C$  от  $x$  для  $P1, R1$  перехода.

Штриховая линия соответствует значениям степени ориентации  $V$  по (I.12).

Отметим, что для  $Q1$  -возбуждения при достаточно больших  $J$  оптическая ориентация не возникает, а степень циркулярности стремится к нулю.

#### § I.4 Теоретическое рассмотрение в пределе больших угловых моментов ( $|\Omega\rangle$ -представление)

а)  $|\Omega\rangle$  - представление

С целью распространения метода /65/ на молекулы с большим  $J$ , М.Дюкло /63,72/ использовал разложение матрицы плотности в обычном  $|JM\rangle$  -представлении по состояниям  $|\Omega\rangle$  -представления, или иначе,  $|J, \vartheta \varphi\rangle$  -состояниям, введенным

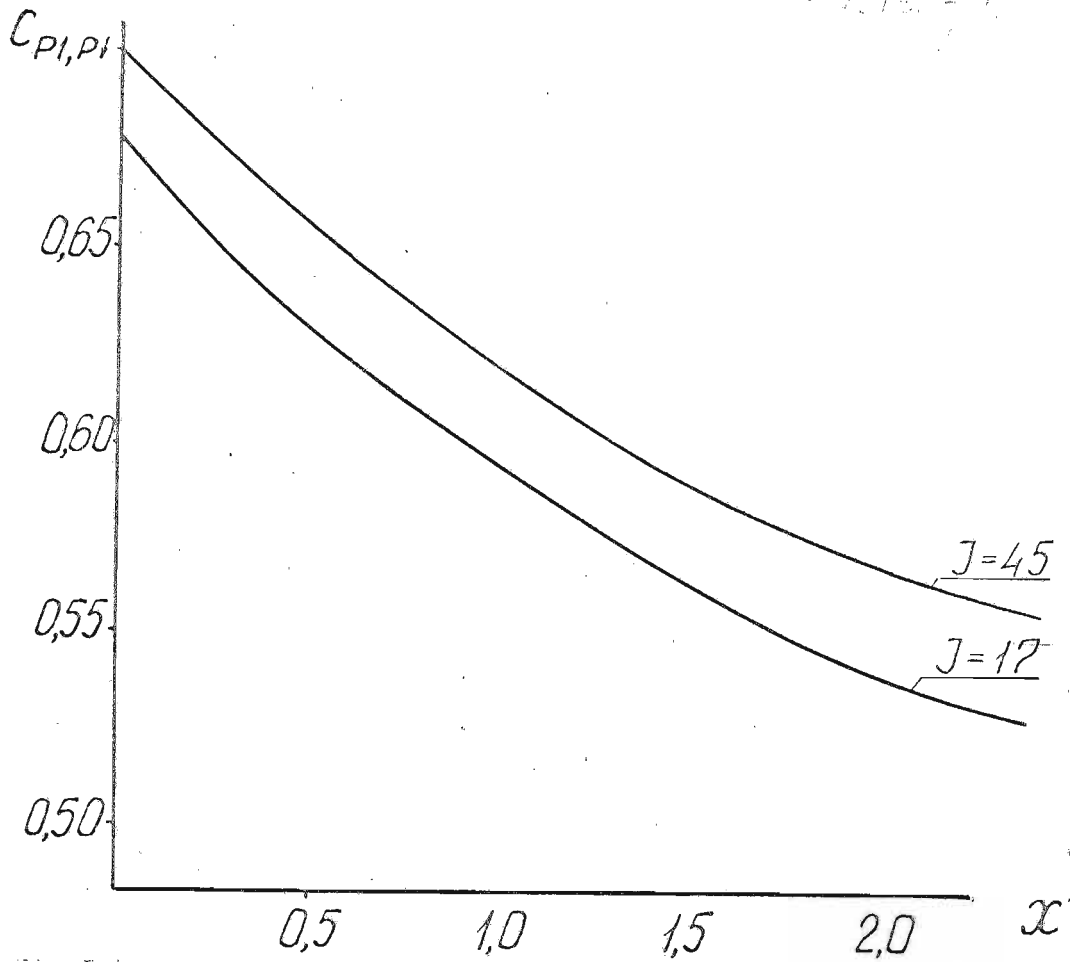


Рис. I.15 Зависимость степени циркулярности  $C$  от  $x$  для  $P1, P1$  -перехода.

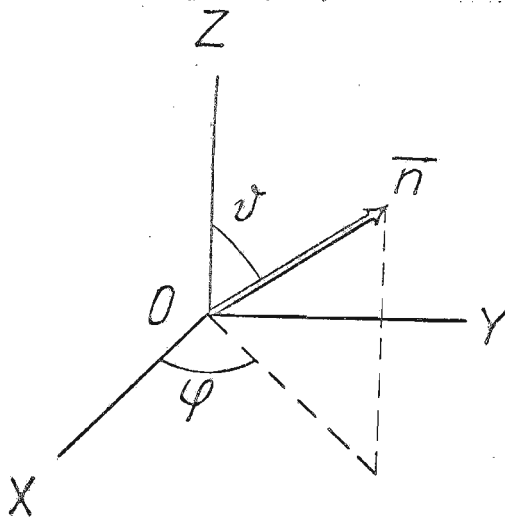


Рис. I.16 Направление единичного вектора  $\vec{n}(\vartheta, \varphi)$ .



для описания атомных систем Ареччи с сотрудниками в /64/. Состояние  $|\Omega\rangle$  можно представить как квантовое состояние, связанное с определенным образом ориентированным (например, вдоль единичного вектора  $\vec{n}(\vartheta, \varphi)$ , рис. I.16) классическим угловым моментом  $\vec{J}$ . Такое представление называется представлением "когерентных состояний углового момента". В этом представлении диагональный матричный элемент физической величины совпадает с соответствующей классической величиной в пределе  $J \rightarrow \infty$  ("классический" предел). Более того, среднее значение электрического дипольного момента ведет себя как классический диполь.

Состояние  $|\Omega\rangle$ , связанное с единичным вектором  $\vec{n}(\vartheta, \varphi)$  рис. I.16, определяется как  $|\Omega\rangle = |J, \vartheta, \varphi\rangle = R_{\vartheta, \varphi} |J, J\rangle$ , где  $|J, J\rangle$  - символ состояния  $|J, M\rangle$ , характеризуемого собственными значениями  $J$  оператора  $\hat{J}^2$  и  $M$  оператора  $\hat{J}_z$  для  $M=J$ . Видно, что состояние  $|\Omega\rangle$  образуется поворотом вектора  $|J, M=J\rangle$  на угол  $\vartheta$  вокруг  $OY$  и на угол  $\varphi$  вокруг  $OZ$ , рис. I.16, в пространстве угловых моментов;  $R_{\vartheta, \varphi}$  - матрица поворота, приведенная в /63, 64, 70/. Набор  $|\Omega\rangle$ -состояний образует ортогональную систему базисных состояний в пределе  $J \rightarrow \infty$ , поэтому в определенном смысле (по /64/) обеспечивают квантовомеханическое описание классических представлений.

В таком представлении матрица плотности  $\mathcal{G}$  описывается "квазиплотностью вероятности"  $\mathcal{G}(\Omega)$ , физический смысл которой заключается в том, что  $\mathcal{G}(\Omega)d\Omega$  есть вероятность для вектора углового момента  $\vec{J}$  иметь направление в пределах телесного угла  $d\Omega = \sin\vartheta d\vartheta d\varphi$  вдоль  $\vec{n}$ , рис. I.16. В таком формализме, как показал М. Дюкло /63, 72/ тензорные компоненты

$$\rho_q^{(\lambda e)} \text{ матрицы плотности } \mathcal{G}_{MM'} = \sum_{\lambda e, q} \rho_q^{(\lambda e)} (T_q^{(\lambda e)}) \text{ связаны с } \mathcal{G}(\Omega):$$

$$\rho_q^{(\lambda e)} = \int \mathcal{G}(\Omega) (Y_{\lambda e}^q(\Omega))^* d\Omega, \quad (I.13)$$

в котором  $Y_{\ell}^q(\Omega)$  - сферические функции /19/. Обратное соотношение имеет вид

$$G(\Omega) = \sum_{\ell, q} \rho_{\ell}^{(\ell)} Y_{\ell}^q(\Omega). \quad (I.14)$$

б) уравнение для  $G(\Omega)$

Пусть молекулы возбуждаются линейно-поляризованным лазерным лучом с уровня  $(v'', J'')$  основного электронного состояния на уровень  $(v', J')$  возбужденного состояния, рис. I.3, которые для краткости соответственно обозначим как  $a$  и  $b$ . Запишем, следуя /63/, систему уравнений для плотности вероятности  $G_{a,b}(\Omega)$  в случае  $H=0$  (некогерентное возбуждение); решение при ненулевых магнитных полях для интерпретации эффекта Ханле приведено в § 3.2.

$$\left. \begin{aligned} \dot{G}_a &= V_p C(\Omega)(G_b - G_a) + A_S f_{ba} G_b + \lambda + \gamma G_a \\ \dot{G}_b &= -V_p C(\Omega)(G_b - G_a) - A G_b \end{aligned} \right\} \begin{array}{l} (I.15)' \\ (I.15)'' \end{array}$$

Здесь  $G_{a,b}$  есть  $G(\Omega)$  для уровней  $a$  и  $b$ , связанных лазерным переходом. Первый член (I.15)' описывает опустошение и заселение уровня  $a$  процессами поглощения и вынужденного испускания,  $V_p$  - скорость  $(a \rightarrow b)$ -поглощения,  $C(\Omega)$  характеризует зависимость вероятности перехода от  $\psi, \varphi$ ; произведение  $A_S f_{ba}$ , в котором  $A_S$  - скорость спонтанного распада,  $f_{ba}$  - фактор Франка-Кондона, определяет скорость заселения уровня  $a$  обратными спонтанными переходами. Член  $\gamma G_a$  характеризует скорость опустошения уровня  $a$  релаксационными безызлучательными процессами, а  $\lambda$  - его заселение теми же процессами, в результате которого анизотропное по  $\Omega$  распределение  $G_a(\Omega)$  превращается в изотропное. Смысл констант  $V_p, A_S, \gamma, \lambda$  такой же, как в (I.5). Подобным образом уравнение (I.15)'' составлено для  $b$ -уровня;  $A$  - суммарная

константа спонтанного и безызлучательного распада.

Стационарное решение (I.15) приводит к выражению для  $\sigma_a(\Omega)$

$$\sigma_a(\Omega) = \frac{\lambda/\gamma}{1 + x C(\Omega) \frac{A - A_s f_{ba}}{A + B\rho C(\Omega)}}, \quad (\text{I.16})$$

которое для рассмотренного ранее (§ I.3) случая (I.7) переходит в

$$\sigma_a(\Omega) = \frac{\lambda/\gamma}{1 + x C(\Omega)(1 - f_{ba})}. \quad (\text{I.17})$$

Физический смысл модели легко представить в классическом подходе поглощающих диполей с дипольным моментом  $\vec{p}$  [18,70], в котором  $\sigma_a(\Omega)$  имеет смысл концентрации поглощающих диполей  $n(\vartheta, \varphi)$  в телесном угле  $\Omega$  вдоль  $\vec{n}$ , рис. I.16. Выражение (I.17), если принять  $f_{ba} \ll 1$ , полностью совпадает с полученным выражением в [5] из классического рассмотрения случая возбуждения линейно-поляризованным светом  $Q$ -перехода, для которого классический дипольный момент направлен вдоль  $\vec{J}$ , а  $C(\Omega) = \cos^2 \vartheta$ ;  $\lambda = \gamma \sigma_a^0 \equiv \gamma n_0$ :

$$\sigma_a(\Omega) = n(\vartheta, \varphi) = \frac{n_0}{1 + x \cos^2 \vartheta}. \quad (\text{I.18})$$

Выражение (I.18) демонстрирует, что оптическая накачка, заметная начиная с  $x \sim 1$ , приводит к преимущественному выстраиванию моментов в плоскости, перпендикулярной вектору  $\vec{E}$  возбуждающего света (ср. рис. I.6a).

Переходу  $P$ - или  $R$ -типа при линейно-поляризованном возбуждении соответствует классическая модель диполей, лежащих в плоскости вращения молекулы, т.е.  $\vec{p} \perp \vec{J}$  [18],

$C(\Omega) = \frac{1}{2} \sin^2 \vartheta$ , и с учетом большой частоты вращения молекулы моменты  $\vec{J}$  оказываются преимущественно выстроенными вдоль  $\vec{E}$  (ср. рис. I.6б).

в) выражения для интенсивности и степени поляризации флуоресценции

Интенсивность флуоресценции  $(v', J') \rightarrow (v'', J'')$  определяется выражением

$$I_{ij} = B\rho \int_{(\Omega)} C_i(\Omega) D_j(\Omega) C_a(\Omega) d\Omega. \quad (I.19)$$

В частности, для  $Q1, Q1$  -перехода, используя (I.18), получаем /5/, схема рис. I.7:

$$I_{\parallel} = B\rho \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} n(\vartheta, \varphi) \cos^4 \vartheta \sin \vartheta d\vartheta d\varphi = \quad (I.20)$$

$$= B\rho n_0 4\pi x^{-1} [x^{-\frac{3}{2}} \operatorname{arc} \operatorname{tg}(x^{\frac{1}{2}}) - x^{-1} + \frac{1}{3}]$$

$$I_{\perp} = B\rho \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} n(\vartheta, \varphi) \cos^2 \vartheta \sin^2 \vartheta \cos^2 \varphi \sin \vartheta d\vartheta d\varphi = \quad (I.21)$$

$$= B\rho n_0 2\pi x^{-1} [-x^{-\frac{1}{2}}(x^{-1}+1) \operatorname{arc} \operatorname{tg}(x^{\frac{1}{2}}) + x^{-1} + \frac{2}{3}].$$

Степень поляризации отсюда

$$\rho(x) = \frac{3x^{-\frac{1}{2}}(3x^{-1}+1) \operatorname{arc} \operatorname{tg}(x^{\frac{1}{2}}) - 9x^{-1}}{3x^{-\frac{1}{2}}(x^{-1}-1) \operatorname{arc} \operatorname{tg}(x^{\frac{1}{2}}) - 3x^{-1} + 4} \quad (I.22)$$

Для  $x \rightarrow 0$  (в пределе слабого возбуждения)  $I_{\parallel}^{(0)} = \frac{4\pi B\rho n_0}{5}$ ,  
 $I_{\perp}^{(0)} = \frac{4\pi B\rho n_0}{15}$ ,  $\rho^{(0)} = 0,5$ .

Зависимость, определяемая (I.22), уже для  $J \geq 5$  совпадает с квантовомеханическим расчетом по табл. I.Ia, рис. I.II.

Качественно уменьшение степени поляризации можно наглядно

пояснить следующим образом. Преимущественно при поглощении

возбуждаются молекулы с  $\vec{J} \parallel \vec{E}$ , т.к. вероятность поглощения

пропорциональна  $\cos^2 \vartheta$ ,  $\vartheta$  - угол между  $\vec{p}$  и  $\vec{E}$ , а,

значит, и между  $\vec{J}$  и  $\vec{E}$ . Но так как вероятность испускания

-компоненты поляризованной вдоль  $\vec{E}$ , также  $\propto \cos^2 \vartheta$ , то

именно такие молекулы с  $\vec{J} \parallel \vec{E}$  вносят большой вклад в  $I_{\parallel}$ .

Отсюда  $I_{\parallel}$  испытывает относительно большее насыщение с ростом

$\rho$ , чем  $I_1$ , см. рис. I.9, I.10. А отсюда с очевидностью следует уменьшение степени поляризации  $\rho(x)$  с ростом  $x$ , рис. I.11.

В случае  $P$  или  $R$ -ветвей зависимость степени поляризации и  $\chi$  от параметра  $x$ , рассчитанная в классическом пределе, приведена в виде пунктирной кривой на рис. I.12, I.13. Видно, что даже для столь больших значений  $J = J'' = 45$  применение  $\Omega$ -формализма вносит ошибку, особенно заметную для  $P_1, P_1'$ -компоненты дублета.

Итак, для  $Q$ -переходов, учитывая реальные значения  $J \geq 43$ ,  $|JM\rangle$  и  $|\Omega\rangle$ -представления эквивалентны; последнее использовалось для расчетов как дающее более простую формулу. Для  $P$ - и  $R$ -переходов использовалось  $|JM\rangle$ -представление.

г) связь с компонентами  $\rho_q^{(\lambda)}$

При разложении матрицы плотности по неприводимым тензорным операторам группы вращения  $T_q^{(\lambda)}$  [61, 62]

$$G_{MM'} = \sum_{\lambda=0}^{2J} \sum_{q=-\lambda}^{\lambda} (-1)^q \rho_q^{(\lambda)} (T_{-q}^{(\lambda)})_{MM'} \quad (I.23)$$

$$(T_q^{(\lambda)})_{MM'} = (-1)^{J-M'} \frac{2\lambda+1}{2J+1} \begin{pmatrix} J & \lambda & J \\ -M & q & M' \end{pmatrix},$$

коэффициенты  $\rho_q^{(\lambda)}$  или иначе "поляризационные моменты" также есть тензоры ранга  $\lambda$ , несущие всю информацию об ансамбле частиц. Это представление удобно в том отношении, что в ряде случаев поляризационные моменты релаксируют независимо друг от друга. Компоненты  $\rho_q^{(\lambda)}$  имеют следующий физический смысл:  $\rho_0^{(0)}$  - скаляр, описывает заселенность уровня;  $\rho_{0,\pm 1}^{(1)}$  - вектор ориентации,  $\rho_{0,\pm 1,\pm 2}^{(2)}$  - тензор выстраивания. Диагональная компонента  $\rho_0^{(2)}$  описывает продольное выстраивание

уровня  $J$ , и, если остальные компоненты тензора  $\rho_q^{(2)}$  равны нулю, мы имеем так называемое одноосное выстраивание, которое полностью характеризуется населенностями зеемановских подуровней.

Используя связь между  $|\Omega\rangle$  -представлением и тензорным  $q, q'$  -представлением, см. (I.I3), (I.I4), М. Докло /63/ выразил систему уравнений (I.I5) в поляризационных моментах  $\rho_q^{(2)}$ . Если пренебречь вынужденными и обратными спонтанными переходами, можно, следуя /63/, записать при  $H=0$  одно уравнение для компонент  $a \rho_q^{(2)} \equiv \rho_q^{(2)}$  основного уровня в виде

$$\gamma^{(2)} \rho_q^{(2)} = \lambda \sqrt{4\pi} \delta_{q0} \delta_{q'0} + B \rho \sum_{q''q'} C_{qq''}^{22q} C_{q''q'}^{22q'} \rho_{q'}^{(2)} \quad (I.24)$$

где  $\delta_{q0}, \delta_{q'0}$  - символы Кронекера, а матричные элементы  $C_{qq''}^{22q}$  определяются через угловые функции  $Y_{2q}^q$  как

$$C_{qq''}^{22q} = \int_{(\Omega)} (Y_{2q}^q)^* C(\Omega) Y_{2q}^{q'} d\Omega \quad (I.25)$$

Из (I.24) и ортогональности функций  $\int_{(\Omega)} (Y_{2q}^q)^* Y_{2q}^q d\Omega = \delta_{qq'}$  /19/ следует, что, как и следовало ожидать, при некогерентном линейно-поляризованном возбуждении для  $\rho_q^{(2)}$  отлична от нуля лишь компонента  $\rho_0^{(2)}$ , т.е. в нашем случае оптическое выстраивание основного состояния имеет вид продольного выстраивания.

К этому также легко придти, если непосредственно подставить в (I.I3) выражение (I.I7), и тогда  $\rho_0^{(2)} = \int_{(\Omega)} (\lambda/\gamma) [Y_0^{(2)}(\Omega)/(1+x C(\Omega))] d\Omega$ .

## § I.5 Экспериментальная установка

### а) блок - схема установки

Для изучения оптической накачки основного состояния двухатомных молекул лазерно-флуоресцентным методом была создана

установка, блок-схема которой представлена на рис. I.17

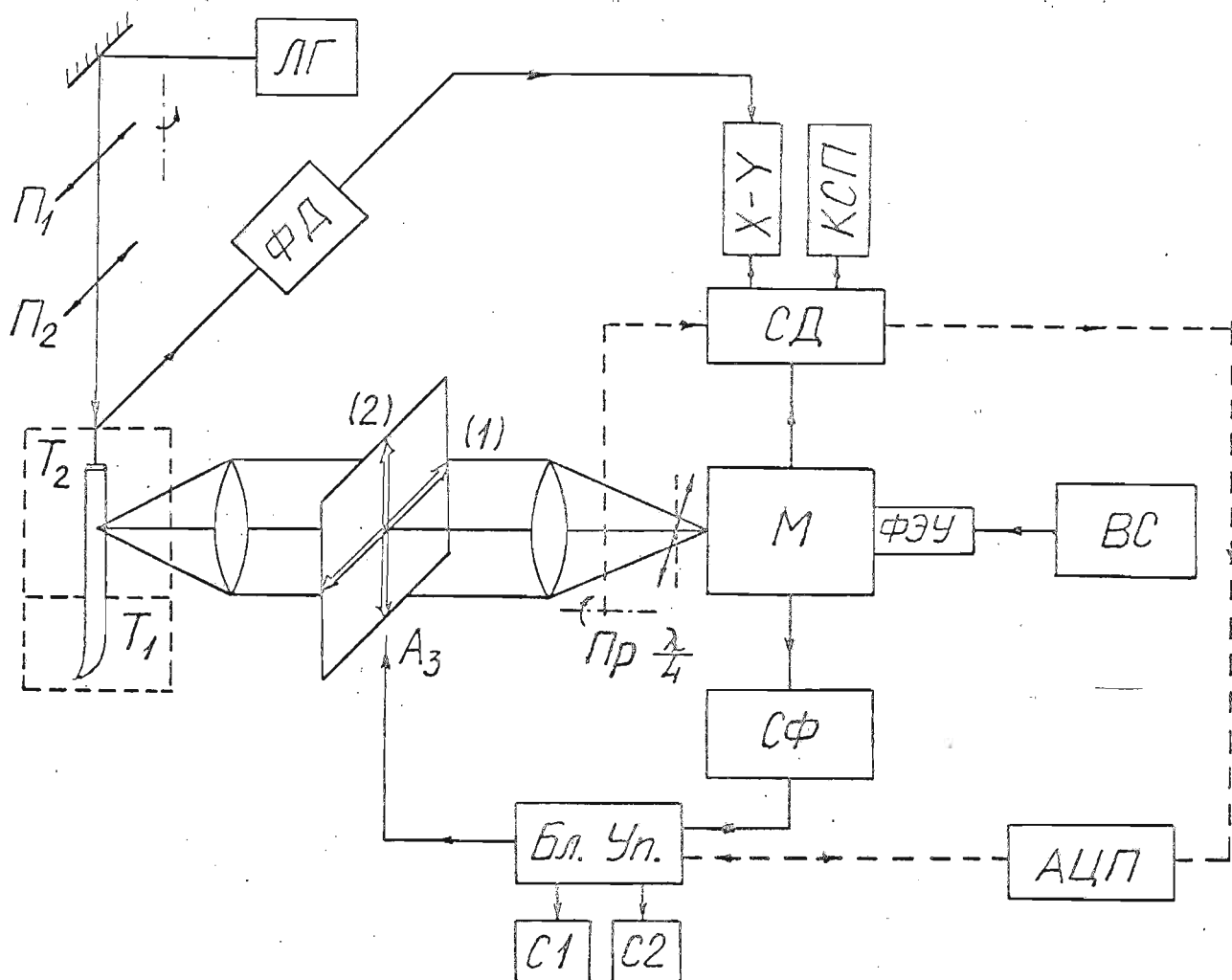


Рис. I.17 Блок-схема экспериментальной установки

Излучение газового лазера ЛГ, проходя через призменные поляризаторы  $\Pi_1$  и  $\Pi_2$ , попадает в ячейку флуоресценции, помещенную в печь-термостат. Флуоресценция с помощью линз фокусируется на щель монохроматора  $M$ . Анализатор  $A_3$  позволял выделить компоненту флуоресценции необходимой поляризации. Световой сигнал регистрировался фотоэлектронным умножителем типа ФЭУ-17А либо ФЭУ-79 с источником питания ВС-22. Далее в зависимости от характера эксперимента выбирался один из следующих методов детектирования фотоэлектрического сигнала.

Для не слишком слабых световых потоков использовалось детектирование с помощью синхродетектора СД, синхронизированного с прерывателем светового пучка  $\Gamma p$ . Запись сигнала с СД осуществлялась либо самопишущим потенциометром типа КСП, либо двухкоординатным  $X - Y$  потенциометром ПДС. В последнем случае для записи зависимости интенсивности флуоресценции от плотности мощности лазера  $\rho$  на координату  $X$  подавали сигнал с фотодиода ФД, причем изменение интенсивности производилось вращением поляризатора  $\Pi_I$ . Степень поляризации флуоресценции измерялась цифровым методом с накоплением импульсов счетчиками  $C_1, C_2$ . С этой целью сигнал с выхода СД поступал на вход цифрового вольтметра ВК7-10А, использовавшегося как аналого-цифровой преобразователь АЦП. Импульсы с выхода АЦП подавались в блок управления Бл.Уп., который переводил анализатор  $A_3$  в положение (1) или (2) и одновременно запускал цифровой вольтметр, синхронно направляя импульсы в счетчики  $C_1$  или  $C_2$ .

В случае экспериментов со слабыми световыми потоками регистрация сигналов с ФЭУ осуществлялась методом счета фотонов, см. § 1.5в.

#### б) ячейка флуоресценции

В экспериментах использовались щелочные металлы производства Левозерского ГОК (ТУ 48-05-23-70). Химический состав для натрия:  $Na - 99,993\%$ ,  $K - 0,007\%$ ; для калия:  $K - 99,995\%$ ,  $Na - 0,005\%$ .

Ампулы с металлом охлаждались до температуры жидкого азота, разбивались и помещались в вакуумную систему. После дополнительной очистки путем многократной дистилляции в вакууме не хуже  $10^{-6}$  тор металл перегонялся в ячейку флуоресценции, рис. 1.18.



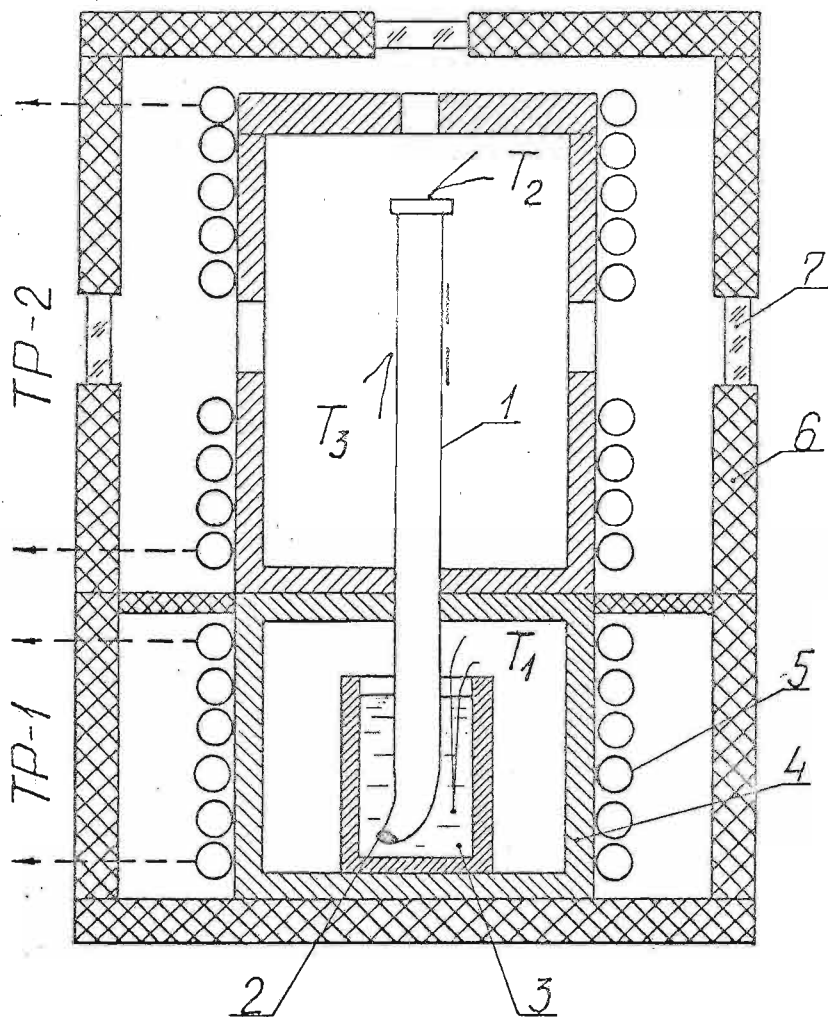


Рис. I.18 Ячейка флуоресценции и печь-термостат

Ячейки флуоресценции изготовлялись из спецстекла марки С 5I-I, устойчивого к действию паров натрия и калия при температуре  $\approx 730$  К. Ячейки имели цилиндрическую форму с внутренним диаметром около 8 мм. Перед перегонкой исследуемого металла и отпайкой ячейки подвергались тренировочному прогреву в вакууме до температур 720–760 К, что на 100 К и более превышало рабочие температуры и обеспечивало сохранение вакуума при экспериментах с отпаянными от вакуумной системы ячейками.

Поскольку концентрации атомов и молекул натрия и калия

определялись по температуре насыщенного пара, важной задачей являлось создание стабильного термического режима. С этой целью была создана печь-термостат, рис. I.18. Печь состояла из двух частей, верхней и нижней, причем температура верхней печи была на несколько градусов выше, чем нижней для предотвращения конденсации металла в верхней части ячейки. Концентрация паров определялась температурой нижней части ячейки. Для улучшения однородности нагрева и термического контакта термопар-стекло нижняя часть ячейки вместе с термопарой помещались в среду жидкого металла (3) - сплав Вуда с температурой плавления  $< 370$  К.

В качестве нагревательного элемента использовались нихромовые спирали (4), которые с целью более однородного распределения температур в нагреваемом объеме наматывались на толсто-стенный теплопроводящий металлический цилиндр (5). Спираль укладывалась биффиллярно с целью компенсации магнитного поля. Теплоизоляция обеспечивалась наружным цилиндром (6) из асбестоцемента с вмонтированными окошками (7) из плавленого кварца.

Температура измерялась хромелькопелевыми термопарами ( $T_i$ ) в нескольких точках.

Питание печи-термостата осуществлялось двумя автоматическими терморегуляторами ТР-1 и ТР-2, изготовленными в Проблемной лаборатории спектроскопии (ПЛС) Латв.Госуниверситета. /73/. Терморегуляторы обеспечивали стабильность температур около 0,5 К (в диапазоне 420 К ÷ 620 К) в течение нескольких часов.

#### в) р е г и с т р а ц и я   с и г н а л о в

Выделенный диафрагмой участок лазерно-возбужденной флуоресценции, рис. I.18, высотой около 10 мм, фокусировался

на входную щель спектрального прибора  $M$ , рис. I.17, выделяющего необходимую спектральную линию. Использовался двойной монохроматор ДФС-12 с дифракционными решетками 600 штрихов/мм и с обратной линейной дисперсией 0,5 нм/мм. Излучение с выходной щели ДФС-12 с помощью линзы фокусировалось на фотокатод ФЭУ.

Рассмотрим подробнее работу регистрирующей части установки, рис. I.17 при измерении степени поляризации в режиме счета фотонов. В качестве фотоприемников использованы охлаждаемые ФЭУ-79 – охлаждение производилось водой до температуры 280 К, а при необходимости с помощью микрохолодильника до 250 К. Отбор ФЭУ для работы в режиме одноэлектронных импульсов, а также выбор оптимального напряжения питания и уровня дискриминации проводился на аппаратуре счета фотонов фирмы Ортекс Брукдил 5С-1. Количество темповых импульсов составляло около  $1-10$  имп.с<sup>-1</sup> в зависимости от глубины охлаждения.

Блок счета фотонов СФ, рис. I.17, разработан в ПЛС Латв. ГУ и детально описан в /74/. Применение высокочастотного компаратора К 521 СА2 (К 554 СА2) позволило уменьшить габариты и смонтировать блок в одном корпусе с ФЭУ с отдельным выносным источником регулируемого уровня дискриминации. Устройство обладает высокой предельной скоростью счета фотонов, большой помехоустойчивостью, нечувствителью к нестабильностям напряжения сети. Линейность сигнала в пределах 0,3% при скорости счета до  $3 \cdot 10^4$  имп.с<sup>-1</sup>.

Для исследования степени поляризации было необходимо достаточно точно регистрировать разность между интенсивностями, в том числе предельно слабых (при малых концентрациях излучающих молекул) световых потоков. Это достигалось использованием счета фотонов с практически неограниченным временем накопления

в сочетании с достаточно частым (через 1 с) переключением каналов (1) и (2) ортогональной поляризации, рис. 1.17, в первую очередь для того, чтобы исключить воздействие медленного, т.е. с характерным временем  $5 \div 20$  мин, дрейфа мощности лазерного источника излучения. Переключение производилось блоком управления Бл.Уп., смонтированным аналогично логическому блоку измерителя слабых световых потоков /75/. Логический блок управлял электромагнитом, переводящим поляроид  $A_3$  в положение (1) либо (2) и соответственно направлял импульсы на суммирующий вход счетчиков  $C_1$  и  $C_2$ , в качестве которых использованы частотомеры ЧЗ-38. На период переброски поляроида отведено "мертвое" время между циклами, равное 1 с. Количество циклов устанавливалось 10 либо 100, после которых блок управления останавливал измерение. Эффективность данной системы регистрации можно охарактеризовать такими данными: при световых потоках, дающих около 200 имп.  $s^{-1}$  и продолжительности измерений около 50 мин. абсолютная величина случайной погрешности измерения степени поляризации составляла около  $\pm 0.003$ .

Как известно, поляризационные измерения затруднены из-за т.н. "инструментальной поляризации", т.е. система неодинаковым образом реагирует на одинаковые по величине значения  $I(1)$  и  $I(2)$ . Наибольшую поляризующую способность имеет монохроматор, поэтому на входе с помощью пластинки  $\lambda/4$  из слюды свет преобразуется в циркулярно поляризованный.

Для точного измерения остаточной инструментальной поляризации регистрирующей системы необходимо иметь источник неполяризованного света, по своей форме и местонахождению воспроизводящий измеряемый объект. Трудность создания такого источника очевидна, и в экспериментах в качестве источника неполяризованного излучения использовалась непосредственно лазерно возбужден-

ная флуоресценция двухатомных молекул, рис. I.17, однако при направлении вектора  $\vec{E}$  возбуждения вдоль направления наблюдения. В этом случае для идеальной системы должно быть  $I(1) = I(2)$ , и измеряя отношение  $I(1)/I(2) = K$  осуществлялась калибровка всей регистрирующей системы.

Окончательная формула для степени поляризации имеет вид

$$\rho = \frac{N(1) - KN(2)}{(N(1) - n_{\phi}) + K(N(2) - n_{\phi})}, \quad (I.26)$$

где  $N(1)$ ,  $N(2)$  - показания счетчиков  $C_1$  и  $C_2$ ,  $n_{\phi}$  - количество фоновых импульсов, обусловленных темновыми импульсами ФЭУ, т.е.  $n_{\phi} \ll N(1), N(2)$ .

Юстировка оптической системы и выставление осей поляризаторов осуществлялось по вспомогательному лазерному лучу с точностью около  $1^{\circ}$ .

г) л а з е р н ы е    и с т о ч н и к и  
н а к а ч к и

В качестве источников возбуждения использовались гелий-неоновый лазер для  $K_2$ ,  $Na_2$  и аргоновый ионный лазер для  $Na_2$ . Используемый  $He-Ne$  лазер марки ЛГ-36А имел мощность до 50 мВт на линии 632.8 нм в одной поперечной моде  $TEM_{00q}$  при многомодовом режиме (в отношении продольных мод "q").

Аргоновый  $Ar^+$ -лазер типа ЛГ 106 М1 с активным элементом из окиси бериллия, имеющим период эксплуатации  $> 500$  часов, обладал мощностью до 2 Вт на всех линиях генерации. Селекция необходимой линии 488.0 нм или 514.5 нм осуществлялась с помощью призмы. Режим работы -  $TEM_{00q}$ .

Много внимания уделялось уменьшению дрейфа мощности ОКГ. Для ЛГ 36А подбирались газоразрядные трубки, использовалось воздушное охлаждение активного элемента, и в итоге дрейф

мощности не превышал 5% за время эксперимента. Для  $Ar^+$ -лазера также применено дополнительное воздушное охлаждение, отдельное водяное охлаждение соленоида, раздельное питание соленоида и разрядной трубки, и дрейф мощности в результате имел примерно ту же величину. Во время всех экспериментов мощность ОКТ постоянно контролировалась с помощью фотодиода ФД, рис. I.17. Для измерения абсолютной мощности применен прибор ИИТ-1.

Профиль лазерного луча измерялся методом двух скрещенных сканируемых щелей /76/, приближенно описывался контуром Гаусса и имел ширину на  $e^{-2}$  от 1,5 мм до 3 мм в зависимости от зеркал резонатора.

#### § I.6 Отождествление эффекта выстраивания и ориентации $(v'', J'') \chi' \Sigma_g^+$ уровней $Na_2, K_2$ .

С целью подтверждения возможности оптической накачки при селективном по  $M$  поглощении лазерного излучения были проведены эксперименты по измерению зависимости интенсивности и степени поляризации флуоресценции  $Na_2$  и  $K_2$  от плотности мощности возбуждения линиями  $Ar^+$  и  $He-Ne$  лазеров. Уменьшение степени поляризации, используя представления § I.3, § I.4, отождествлено с оптическим выстраиванием конкретного уровня  $(v'', J'')$  основного электронного состояния, который устанавливался путем расшифровки спектров излучения.

Уменьшение степени циркулярности флуоресценции молекул  $Na_2$  отождествлено с оптической ориентацией уровня основного состояния.

Уровни  $(v'', J'')$  основного состояния  $Na_2$  и  $K_2$ , на которых констатирована оптическая накачка, приведены в табл. I.2.

## а) оптическое выстраивание

Экспериментальные зависимости интенсивности флуоресценции  $Na_2$  от мощности лазерного возбуждения приведены на рис. I.19а. Возбуждение паров производилось линейно-поляризованным светом длиной волны 488.0 нм  $Ar^+$ -лазера, переход  $(v''=3, J''=43) \chi' \Sigma_g^+$   $\longrightarrow (v'=6, J'=43) B' \Pi_u$ , см. табл. I.2. Для регистрации  $Q1, Q1'$ -флуоресценции выбрана линия  $Q_{13}$ , т.е. переход  $(v'=6, J'=43) \longrightarrow (v''=13, J''=43)$ . Расшифровка спектра флуоресценции, см. Приложение 2, рис. П2.1, проводилась по спектроскопическим данным работы /15/. Кривые  $I_{\parallel, \perp}(\rho)$  сглаживались на ЭВМ, и строились соответствующие зависимости для степени линейной поляризации, рис. I.19б. Как видно из рисунка, отклонение от линейной зависимости интенсивности флуоресценции, а, значит, и поглощения, одновременно приводит к уменьшению степени поляризации. Это и является проявлением эффекта оптической накачки (в данном случае выстраивания) селективным по  $M$  опустошением основного уровня  $(3, 43) \chi' \Sigma_g^+$ , как следует из рассмотрения § I.3, § I.4, см. рис. I.9, I.11.

Оптическое выстраивание основного уровня  $(1, 72) \chi' \Sigma_g^+$  другой молекулы - молекулы  $K_2$  - иллюстрируется на рис. I.20. В качестве источника накачки применено излучение 632.8 нм  $He-Ne$  лазера, которое особенно эффективно возбуждает  $Q$ -переход  $(v''=1, J''=72) \chi' \Sigma_g^+ \longrightarrow (v'=8, J'=72) B' \Pi_u$ , см. спектр на рис. П2.4.

Флуоресценция регистрировалась на длине волны, соответствующей линии  $Q_{10}$ . Пунктирные кривые соответствуют расчету, проведенному вариацией одного нелинейного параметра  $B/\gamma$  методом наименьших квадратов по выражениям (I.20) - (I.22).

На рис. I.21 приведены значения  $\mathcal{X}$ , полученные из изме-

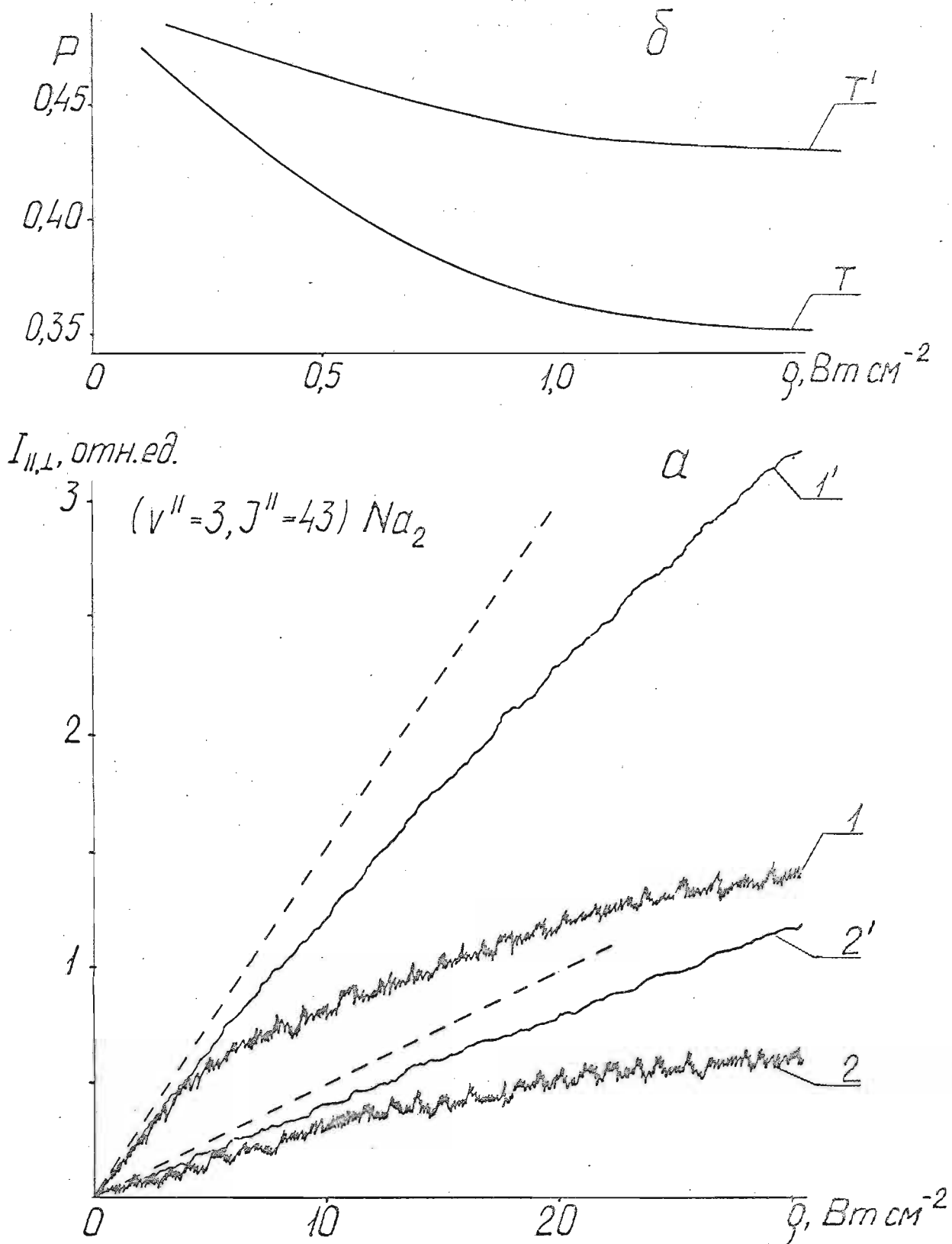


Рис. 1.19 а) измеренная для  $\text{Na}_2$  зависимость  $I_{||}$  (кривые 1 и 1') и  $I_{\perp}$  (2 и 2') от  $\bar{q}$ ; 1 и 2 - при  $T = 571 \text{ K}$ , 1' и 2' - при  $T' = 700 \text{ K}$ . Пунктир относится к отсутствию эффекта накачки;  
 б) кривые для степени поляризации  $P$ .



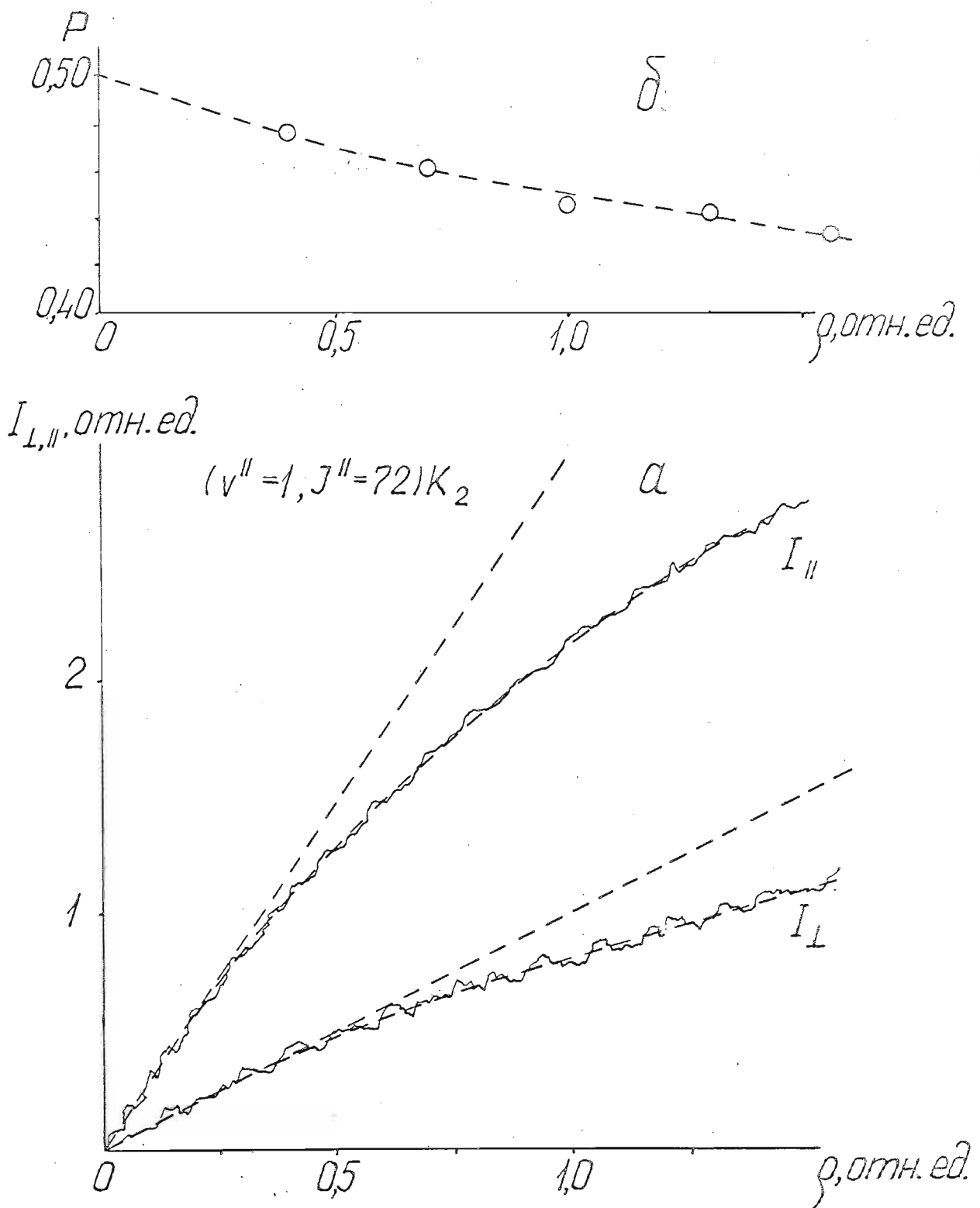


Рис. I.20 Зависимость интенсивности (а) и степени поляризации (б) на линии  $Q_{10}$  флуоресценции  $K_2$ ,  $T=523\text{ K}$ . Пунктирные кривые соответствуют расчету, прямые линии – случаю отсутствия эффекта накачки.

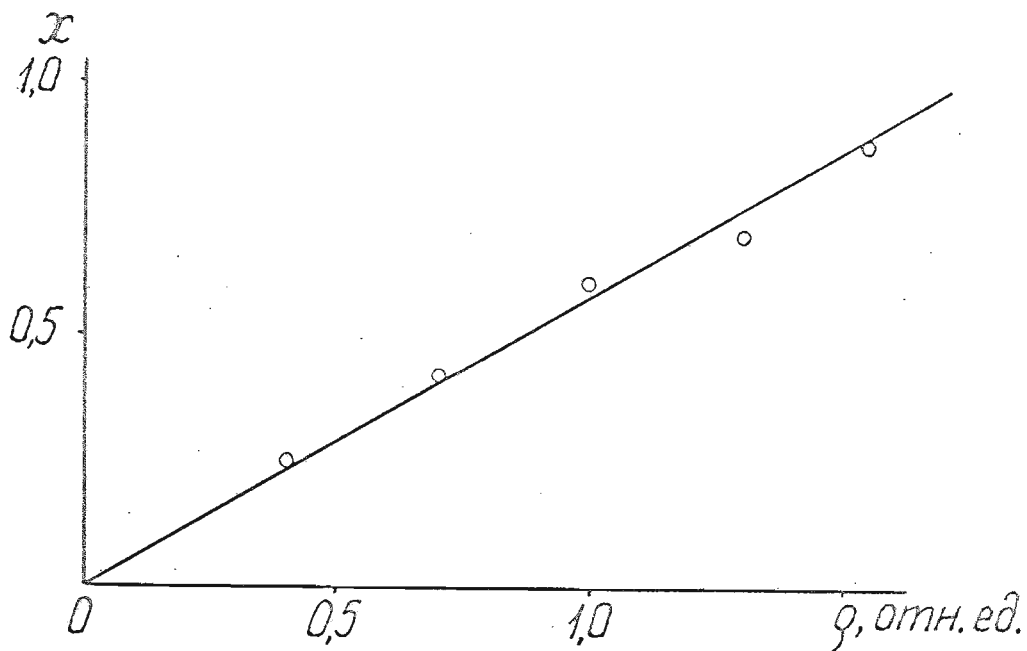


Рис. I.2I Зависимость параметра накачки  $X$  от плотности мощности лазерного возбуждения  $\rho$  (условия рис. I.20, ср. точки I.20б).

ренных при разных  $\rho$  значениях степени поляризации, используя (I.22). Хорошее выполнение пропорциональности  $X$  и  $\rho$  свидетельствует в пользу применимости по крайней мере при не слишком больших  $X \sim 1$  теоретической модели, по которой  $P$  зависит только от одного параметра  $X = B\rho/\gamma$ , причем  $B$  и  $\gamma$  от  $\rho$  не зависят.

Отметим, что значения  $X$ , полученные путем минимизации кривых  $I_{\parallel}(\rho)$ ,  $I_{\perp}(\rho)$  в пределах ошибок совпадают как между собой, так и со значением  $X$ , определенным из измерения степени поляризации.

Величина степени поляризации, измеренная при предельно ослабленном возбуждении, не превышала 0,485, т.е. оказалась примерно на 0,01 меньше расчетной. Такое отклонение, превышающее ошибку измерений, не вызвано столкновительной деполаризацией верхнего уровня, т.к. не зависит от давлений паров, не

объясняется также влиянием СТС /77/. На наш взгляд, причиной здесь являются внешние деполаризующие факторы – возможно, из-за формы или оптической неоднородности стекла трубки флуоресценции. Чтобы уменьшить систематическую ошибку, возникающую при определении  $\chi$ , в экспериментально измеряемые значения  $\rho$  вносилась небольшая поправка, определяемая путем тщательного измерения степени при предельно малой мощности возбуждения.

Для случаев, когда возбуждение и излучение соответствуют  $P$ - или  $R$ -ветви, метод минимизации кривых  $I_{\parallel, \perp}(\rho)$  может оказаться удобнее для определения параметра накачки  $\chi$ , чем измерение небольших изменений степеней поляризации, меньших  $1/7$  (табл. I.I), т.к. даже незначительные систематические ошибки измерения  $\rho$  вносят заметные отклонения величины  $\chi$ , см. рис. I.I2. Экспериментальная и расчетная зависимости  $I_{\parallel}(\rho)$  для  $P1, R1$ -ветви флуоресценции  $K_2$  приведены на рис. I.22.

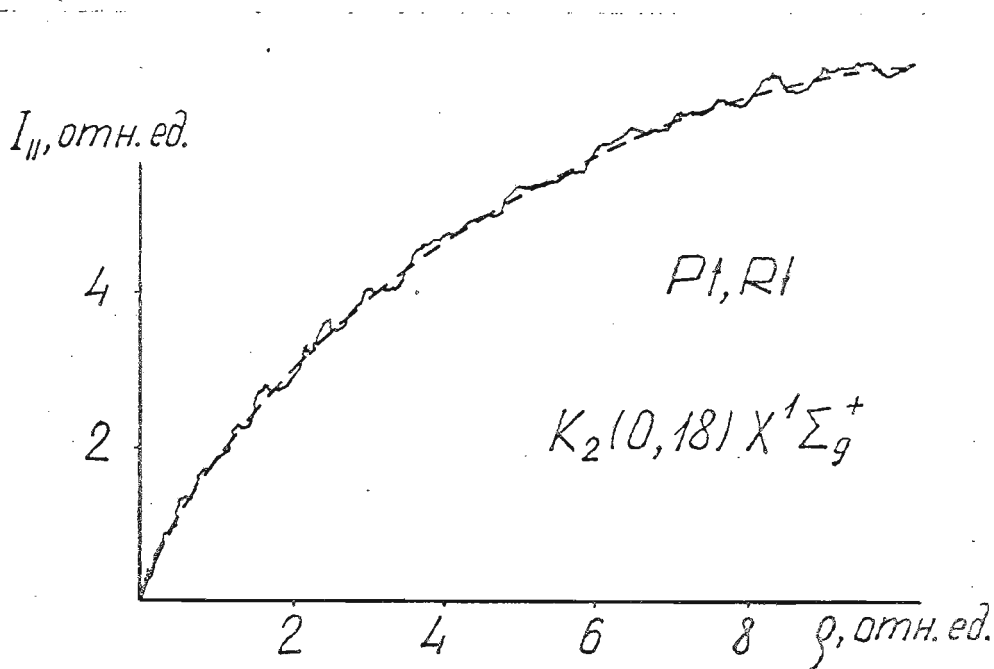


Рис. I.22 Экспериментальная и расчетная (штриховая линия) зависимости интенсивности  $I_{\parallel}$  линии  $R_7$ ; температура  $T = 523$  К.

Линией 632,8 нм He-Ne лазера возбуждался переход  $(0, 18) \chi' \Sigma_g^+ \longrightarrow (6, 17) B' \Pi_u$ ; регистрировалась линия  $R_7$ .

Расчет проведен по квантово-механическому выражению, см.

§ I.3.

### б) оптическая ориентация

Оптическая ориентация основного уровня при поглощении циркулярно поляризованного излучения 632,8 нм He-Ne лазера зарегистрирована на двух подуровнях  $Na_2 (\chi' \Sigma_g^+)$ , см. табл. I.2. Переходы в спектре флуоресценции, рис. II.3, идентифицированы с использованием данных /16/.

Экспериментальная установка отличается от изображенной на рис. I.17 направлением возбуждающего луча, рис. I.8. Возбуждающая линия 632,8 нм дополнительно срезалась фильтром, расположенным перед монохроматором. Так как эффективность возбуждения хуже, чем, например, для  $K_2$ , плотность мощности возбуждения увеличивалась до  $\rho \sim 10 \text{ Вт.см}^{-2}$  фокусировкой луча до диаметра примерно 0,5 мм. Соответствующие  $\lambda/4$ -пластинки в возбуждении и наблюдении изготавливались из слюды; измеренная эллиптичность была порядка  $1 \div 2\%$ .

Измеренные значения степени циркулярности  $C_{P1, R1}$  приведены на рис. I.23 для линии  $R_{10}$  флуоресценции  $A \rightarrow X$  полосы. Возбуждался  $P$ -переход  $(v''=2, J''=45) \chi' \Sigma_g^+ \longrightarrow (v'=14, J'=44) A' \Sigma_u^+$ ,  $T = 633 \text{ К}$ .

Обнаруженное уменьшение степени циркулярности свидетельствует об эффекте оптической ориентации исходного  $(v'', J'')$ -уровня. Сплошная кривая соответствует расчету по формуле табл. I.1 с минимизацией по параметру  $B/\gamma$ .

Подобная зависимость получена и для линий  $P1, P1'$ -ветви а также для  $P$  и  $R$ -линий, возбужденных переходом с уровня

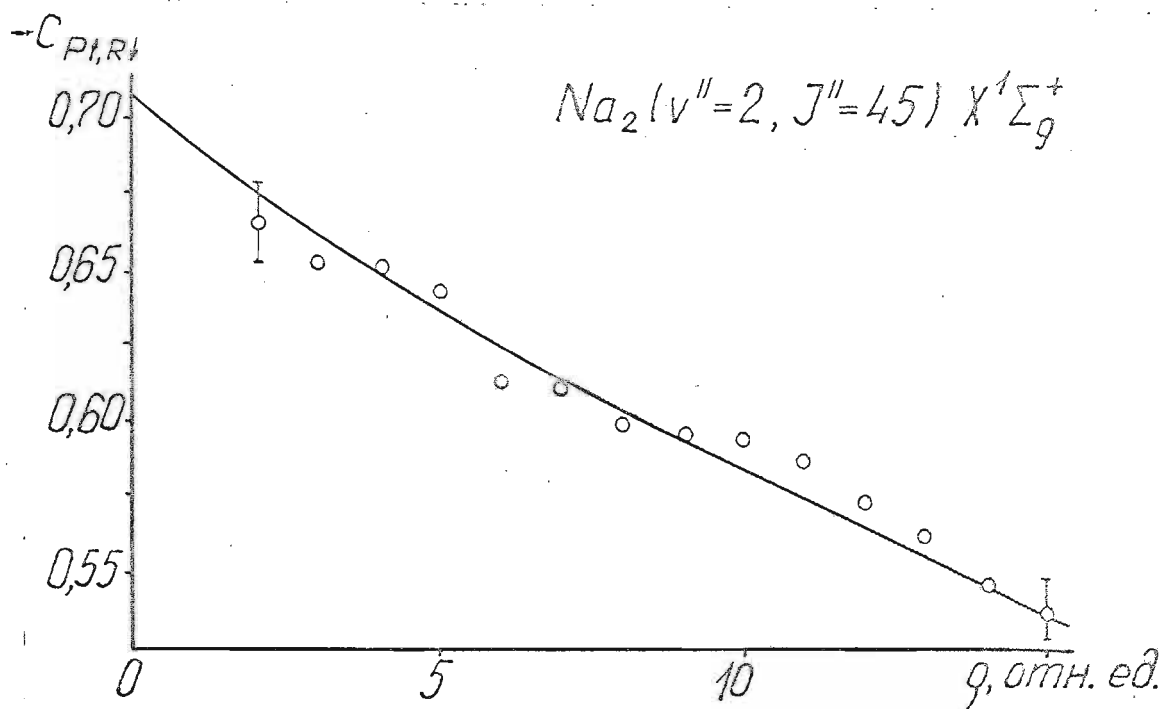


Рис. 1.23 Экспериментальные значения степени циркулярности  $C_{P1,R1}$  в зависимости от плотности мощности возбуждения  $\rho$ . Сплошная кривая соответствует расчету.

( $v'' = 4$ ,  $J'' = 17$ ), табл. 1.2.

Уже при скромных значениях мощности возбуждения ( $\sim 40$  мВт) экспериментальным значениям  $C_{P1,R1} = -0,56$ , рис. 1.23, соответствует заметная степень оптической ориентации  $V$ , см. (1.12), равная 0,2 для  $J'' = 45$ . Экспериментально вполне возможно достичь гораздо больших значений  $V$ , используя более эффективно возбуждающие линии. Отметим, что для параметра  $X = 10$  расчет дает  $V = 0.4$ .

Результаты настоящего параграфа позволяют отождествить зарегистрированные явления в зависимости интенсивности флуоресценции определенной поляризации и степени поляризации (либо циркулярности) от мощности возбуждения с оптическим выстраиванием либо ориентацией основного ( $v''$ ,  $J''$ )-уровня.

Анализ соответствия экспериментальных и теоретических

Табл. I.2 Молекулярные переходы, с помощью которых достигалась оптическая накачка основных  $v''$ ,  $J''$  -уровней

молекула	$\lambda$ возб., нм	Основное состояние		Возбужд. состояние	
		электр. сост.	$v''$ , $J''$	электр. сост.	$v'$ , $J'$
$Na_2$	487.986	$X^1\Sigma_g^+$	3,43	$B^1\Pi_u$	6,43
			2,99		7,99
	514.532		14,49	11,49	
	632.817		2,45	$A^1\Sigma_u^+$	14,44
4,17		16,16			
$K_2$	632.817	$X^1\Sigma_g^+$	1,72	$B^1\Pi_u$	8,72
			0,18		6,17
			0,82		7,81

кривых позволяет принять, что последние верно описывают процесс для достигнутых в экспериментах сравнительно небольших значений параметра накачки  $\mathcal{X}$ . Это позволяет использовать изложенный лазерно-флуоресцентный метод для создания и регистрации оптической накачки и для определения значений параметра  $\mathcal{X}$ . Знание параметра  $\mathcal{X}$  в свою очередь позволяет получить количественные данные о константах релаксационных процессов, чему посвящена следующая глава.

## Г Л А В А I I

ИССЛЕДОВАНИЕ РЕЛАКСАЦИИ ВЫСТРАИВАНИЯ  
( $v''$ ,  $J''$ )  $X^1\Sigma_g^+$ -УРОВНЕЙ  $Na_2$  И  $K_2$  МЕТОДОМ ИЗМЕРЕНИЯ  
ПОЛЯРИЗАЦИИ И ИНТЕНСИВНОСТИ ФЛУОРЕСЦЕНЦИИ

В главе изложены и обсуждены полученные количественные данные о релаксации оптически накачанных ( $v''$ ,  $J''$ )-состояний  $Na_2$  и  $K_2$ .

Для возбужденных электронных состояний димеров удобным методом изучения релаксации, в частности, вращательного и колебательного переноса энергии в столкновениях, является наблюдение так называемых "сателлитов" в спектре лазерно-возбужденной флуоресценции, то есть линий, обусловленных переходами с тех ( $v'$ ,  $J'$ ) уровней, которые заселены столкновительными переходами, см., например, /78-80/. Релаксация анизотропии может изучаться, в частности, традиционным методом столкновительной деполаризации излучения /81/.

Для основного электронного состояния гетероядерных двухатомных молекул применимы различные вариации методов микроволновой спектроскопии, как например, в работе /82/ для  $BaO$ .

Гораздо хуже обстоит дело с изучением процессов термализации по внутренним состояниям в основном электронном состоянии гомоядерных двухатомных молекул (димеров). Это связано с запретом микроволновых излучательных переходов, поэтому весьма трудно проследить, как восстанавливается термическая заселенность либо релаксирует анизотропия селективно опустошенного уровня. Одну из возможностей изучения такого рода релаксации, причем для определенных ( $v''$ ,  $J''$ ) уровней, дает опти-

ческая накачка димеров при селективном поглощении. Предлагаемый метод заключается в сочетании определения параметра оптической накачки (гл. I) с измерением суммарных квантовых потоков всей серии флуоресценции, возбужденной накачивающим переходом. Приводятся результаты определения скоростей релаксации выстраивания, а также суммарных сечений релаксационных соударений для нескольких колебательно-вращательных уровней  $X^1\Sigma_g^+$ -состояния  $Na_2$  и  $K_2$ . Обсуждаются наиболее вероятные каналы релаксационных процессов.

### § 2.1 Обсуждение каналов релаксации оптического выстраивания $(V'', J'')$ -уровней

Изложение метода и результатов изучения релаксационных процессов целесообразно предварить обсуждением возможных каналов релаксации, используя имеющиеся в литературе данные.

Как уже упоминалось в § I.3, вклад в релаксацию оптически накачанного  $(V'', J'')$ -уровня могут вносить следующие процессы:

(1) выстроенные молекулы могут испытывать соударения, вызывающие выравнивание заселенности по  $M''$  в пределах одного энергетического уровня без изменения других квантовых чисел. Это т.н. "чистая деориентация", изменяющая только ориентацию вектора  $\vec{J}$  ;

(2) молекулы с других энергетических уровней могут в результате столкновений перейти на накачиваемый уровень, оказываясь изотропно распределенными по  $M''$ , а оптически накачанные молекулы в свою очередь уходят с энергетического уровня;

(3) оптически накачанные молекулы в результате пространственной диффузии уходят из-под лазерного луча, а ненакачанные — диффундируют под луч.



Рассмотрим подробнее перечисленные процессы, первые два из которых индуцируются столкновениями.

Механизм (I) на первый взгляд может показаться преобладающим, т.к.  $M''$ -уровни вырождены и столкновения всегда энергетически способны вызвать перемешивание по  $M''$ . Тем не менее, как подчеркивается авторами ряда работ /32, 83-85/, роль "чистой" столкновительной деориентации весьма незначительна в подобных экспериментах по следующим причинам. Для больших значений  $J''$  небольшие изменения ( $\Delta M'' = \pm 1$ ) мало изменяют ориентацию /77/. В то же время при столкновениях, сильно изменяющих ориентацию  $\vec{J}$ , с большой вероятностью происходит также изменение скорости вращения, т.е. кв.числа  $J''$  ( $\Delta J'' \ll kT$ ), что приводит к "уходу" молекулы с исходного энергетического уровня ( $V'', J''$ ). Такая интерпретация подтверждена экспериментально, в частности, для основного состояния молекул  $O_2$  авторами /85/, которые по зависимости ширины ЭПР-сигнала от давления для разных уровней  $J''$  вообще показали отсутствие переходов с  $\Delta M \neq 0$  в процессе столкновительного перемешивания между вращательными состояниями. Эксперименты по микроволновому резонансу /83, 84/ доказали отсутствие перемешивания  $M''$ -состояний при переходах между вращательными уровнями  $J = 0, 1, 2$ , индуцированных столкновениями молекул  $OCS$  между собой, а также с примесной молекулой  $O_2$ .

Для щелочных молекул  $Na_2$  ( $B^1\Pi_u$ ) Р.Дралингер и Р.Зеир /32/ исследовали деполяризацию излучения с уровня (6,43) в зависимости от концентрации частиц и констатировали, что при давлениях вплоть до 10 тор деполяризации не происходит, хотя при этих условиях столкновения эффективно вызывают перенос между вращательными состояниями (в спектре появляются сателлиты).

Совершенно аналогичные результаты получены в контрольных экспериментах настоящей работы, в том числе для уровня  $(8,72) K_2 (B^1\Pi_u)$ .

Все это позволяет признать справедливыми выводы /32/ о возможности пренебречь вкладом канала (I) в релаксацию оптически накачанного  $(v'', J'')$ -уровня щелочных молекул по сравнению с ролью процессов (2) и (3).

Рассмотрим канал (2). Индуцированные столкновениями с атомами переходы между внутренними квантовыми состояниями молекул могут быть двух типов: а) превращение относительной кинетической энергии  $T$  во вращательную  $R$  или колебательную  $V$  это  $T-R$  или  $T-V$  обмен /48/; б) бимолекулярная химическая реакция обмена атом-димер /48,49/, заключающаяся в замене налетающим атомом одного из атомов в димере.

Процессы типа (а) изучались экспериментально по индуцированному столкновениями переносу колебательной и вращательной энергии в возбужденном  $B$ -состоянии молекул  $J_2$  /79,80/,  $Li_2$  /86/ и  $Na_2$  /78/, методом лазерно-флуоресцентной спектроскопии. К.Бергман и В.Демтредер /78/ определили суммарные сечения вращательного переноса с уровня  $(v', J') Na_2 (B^1\Pi_u)$   $\sigma_{tot}^R = \sum_{(\Delta J')} \sigma(\Delta J')$  как имеющее порядок величины  $10^{-14} \text{ см}^{-2}$  для  $J'$  между 12 и 99 при столкновениях с различными примесными газами (инертные газы,  $H_2$ ,  $D_2$ ,  $N_2$ ,  $CH_4$  и др.). При этом наблюдались переходы для  $\Delta J'$  от 1 до 9, и сечение  $\sigma(\Delta J)$  уменьшалось с ростом  $\Delta J'$  примерно как  $\frac{\sigma(\Delta J)}{\sigma(\Delta J+1)} \sim 2$ , причем наблюдалась асимметрия сечения по  $\pm \Delta J'$ . Для больших  $J'$  не обнаружено столкновительной деполаризации. Теоретическое рассмотрение процесса, позволившее также объяснить асимметрию, проведено Е.Е.Никитиным с сотр. /87/. Сечение колебательного переноса

$\sigma_{tot}^v \sim 10^{-15} \text{ см}^2$  /78/, т.е. на порядок меньше.

Экспериментальные данные о сечениях обменной реакции (б) приведены в работах, выполненных в ФРГ. упомянутым в § 1.2в методом измерения ширины ЯМР-сигнала двухатомных молекул:  $1,2 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$  для  $\text{Na}_2 + \text{Na}$  /41,46/;  $\approx 1,6 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$  для  $\text{K}_2 + \text{K}$  /42/;  $1,9 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$  для  $\text{Cs}_2 + \text{Cs}$  /39,40/. Расчеты полуэмпирических потенциальных поверхностей реакций выполнены в /38/.

Итак, проведенный анализ позволяет предположить, что канал (2) является основным при столкновительном разрушении оптической накачки ( $v''$ ,  $J''$ )-состояния. На наш взгляд, удачным термином для такого рода релаксации является "столкновительная термализация" /48/, т.е. восстановление термически равновесной заселенности уровней молекул, присутствующих как небольшая примесь в среде играющих роль теплового резервуара атомов.

Диффузия молекул из-под лазерного луча и под луч (канал (3)) происходит с средней частотой  $\gamma_0 \sim \langle v \rangle / a$ , где  $\langle v \rangle$  — средняя скорость пролета молекул через луч шириной  $a$ . В условиях, когда средняя длина свободного пробега  $\gg a$  (что выполнялось при использованных в экспериментах давлениях),  $\gamma_0$  не зависит от концентрации частиц. Скорость релаксации  $\gamma$ , входящая в (1.5) или (1.15), выражается как

$$\gamma = \gamma_0 + \gamma_{coll} = \gamma_0 + N \langle \sigma(u) \cdot u \rangle = \gamma_0 + Nk, \quad (2.1)$$

где  $u$  — относительная скорость сталкивающихся партнеров,  $\sigma(u)$  — полное эффективное сечение релаксации (усреднение производится с учетом функции распределения скоростей  $u$ ), параметр  $k$ ,  $\text{см}^3 \text{с}^{-1}$ , есть константа скорости процесса /48/.

## § 2.2 Определение константы поглощения

Изложим метод определения скорости поглощения  $V_p$ , основанный на измерении квантового потока флуоресценции (см. также приложение 3).

Для определения скорости релаксации  $\gamma$  по известному (см. § I.6) значению  $\chi$ , необходимо знание скорости поглощения  $V_p$ . Ее определение по прямому измерению коэффициента поглощения в ячейке практически невозможно, т.к. поглощается слишком малая доля ( $\sim 10^{-3}$ ) возбуждающего излучения, частотный интервал которого значительно превышает контур поглощения. Кроме того, одновременно возбуждаются несколько  $(v'', J'') \rightarrow (v', J')$  переходов. В этом случае представляется целесообразным использовать флуоресцентный метод, применимость которого основана на том, что квантовый выход флуоресценции можно считать равным единице в рабочем диапазоне концентраций. Это показало количественное изучение процессов дезактивации энергии возбуждения в щелочных парах авторами работ /89, 90/, из которого следует, что процессы тушения верхнего состояния не могут конкурировать со спонтанным распадом (см. также Приложение, рис. III.1).

Пусть  $\eta_{abs}$  — количество квантов лазерного излучения, поглощенного в единице объема за единицу времени в результате некоторого  $(v'', J'') \rightarrow (v', J')$  перехода. При линейно-поляризованном  $Q$ -поглощении для случая, когда нет выстраивания основного уровня,  $n(v, \varphi) = n_{v'', J''} / 4\pi$ , и

$$\eta_{abs} = \frac{n_{v'', J''}}{4\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} V_p \cos^2 \vartheta \sin \vartheta \, d\vartheta \, d\varphi = V_p \frac{n_{v'', J''}}{3} \quad (2.2)$$

Число  $\eta_{abs}$  совпадает с числом излученных по всем направлениям квантов люминесценции  $\eta_{em}$  на всех частотах  $\nu_j$  серии:

Отсюда  $V_p$  связано с  $\eta_{lm}$  как

$$V_p = \frac{3\eta_{lm}}{n_{v'',j''}} = \frac{3}{n_{v'',j''}} \sum_j \eta_{lm}(j) \quad (2.3)$$

Измерения  $\eta_{lm}(j)$  производились сравнением с абсолютной яркостью эталонного источника. Метод подробно изложен в Приложении 3. Грубая оценка относительной погрешности  $V_p$  по парциальным ошибкам измерений отдельных величин дает значение не более 30%.

§ 2.3 Константы и сечения релаксации оптически выстроенных уровней  $(v'', j'')$   $Na_2$  при столкновениях с атомами  $Na$ .

Получены значения констант  $\gamma$  и сечений процессов столкновительного разрушения продольного выстраивания при соударениях  $Na_2 + Na$  для трех колебательно-вращательных уровней  $(v'', j'')$ , а именно (3,43), (14,49) и (2,99), основного  $X^1\Sigma_g^+$ -состояния  $Na_2$ , оптически накачанных линейно поляризованными линиями 488.0 нм и 514.5 нм  $Ar^+$ -лазера. Соответствующие переходы приведены в табл. I.2.

В условиях возбуждения по схеме рис. I.7 цифровым методом (§ I.5) измерялись значения степени поляризации  $P$  выбранных линий флуоресценции в зависимости от концентрации атомов натрия, см. рис.2.I. Стоит обратить внимание, что здесь из-за увеличения скорости столкновительной релаксации оптического выстраивания основных  $(v'', j'')$ -уровней степень поляризации растет с ростом давления — случай, обратный столкновительной деполаризации возбужденного уровня; напомним, что последнее совершенно не проявляется при рабочих давлениях, см. § 2.I.

Далее, следуя выражению (I.22), см. рис.I.II, определялись

значения параметра накачки  $x$ . Зависимость  $x^{-1} = \gamma / B\rho$  от концентрации атомов натрия  $N_{Na}$  приведена на рис. 2.2. Для определения концентрации  $N_{Na}$  по температуре в этом случае использованы экспериментальные данные А.Шавлова и др. /93/, полученные путем измерения поглощения лазера на красителе атомами  $Na$ , которые в общем подтвердили данные, содержащиеся в монографии А.Несмеянова /47/ - расхождения не превышали 10-15%.

Остановимся подробнее на условиях эксперимента. Температура паров изменялась от 559 до 600 К,  $N_{Na}$  от  $1,8 \cdot 10^{14}$  до  $7,4 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$ . При этом общая концентрация молекул  $Na_2$  составляла от  $1,2 \cdot 10^{12}$  до  $8,2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$  /47/; концентрация  $n_{v'',j''}$  на  $(v'',j'')$ -уровнях приведена по оси абсцисс, рис. 2.3. Возбуждение производилось неразделенными линиями аргонового лазера, общей мощностью около 0,8 Вт; профиль луча был близок к гауссовому с шириной 1,8 мм на  $e^{-2}$  от максимума. Измерения степени производились на следующих избранных линиях прогрессии испускания:

$Q_0$  (477.2 нм) при поглощении лазерной линии 488.0 нм с уровня  $(v''=3, j''=43)$ ;  $Q_1$  (512.6 нм) при поглощении лазерной линии 488.0 нм с уровня (2,99);  $Q_2$  (472.5 нм) при поглощении лазерной линии 514.5 нм с уровня (14,49); см. также табл. I.2.

Прежде чем перейти от значений безразмерного параметра  $x^{-1}$  к скорости релаксации для точек, соответствующих рис. 2.1 и рис. 2.2, были сняты зависимости интенсивности флуоресценции от концентрации поглощающих молекул  $n_{v'',j''}$  на исходном  $(v'',j'')$ -уровне. На рис. 2.3 представлен вид таких зависимостей (условия те же, что для рис. 2.1, 2.2), причем по оси ординат представлены значения отношения  $I_{||} / \chi_{||}$ , т.е. поляризованной параллельно вектору  $\vec{E}$ , см. рис. I.7, компоненты интенсивности к параметру нелинейности  $\chi_{||}$  (см. рис. I.10). Это компенсирует

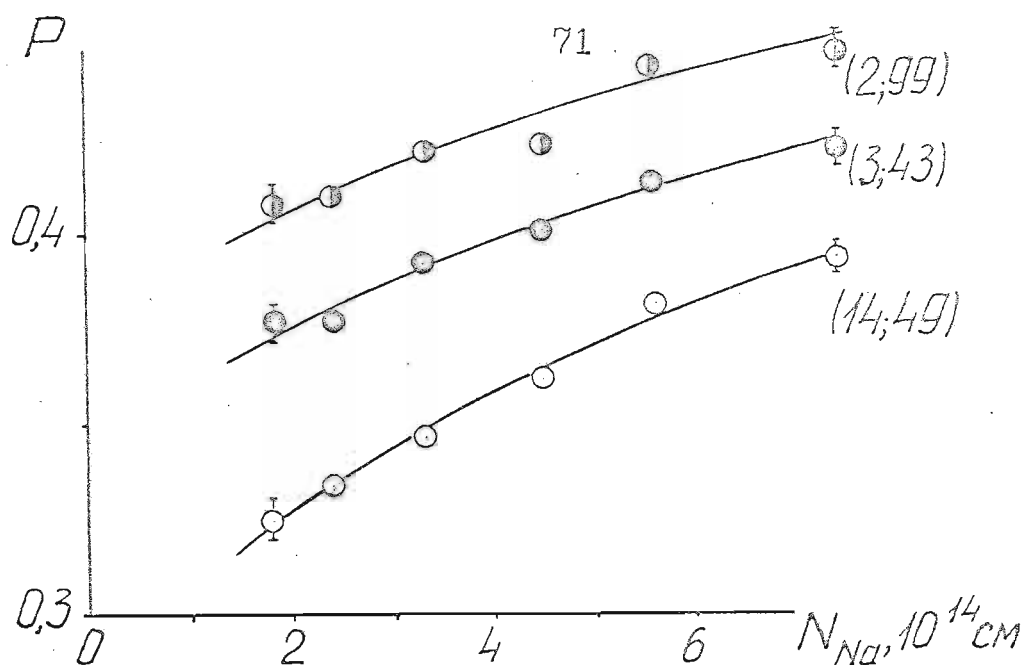


Рис. 2.1 Экспериментальные значения степени поляризации флуоресценции  $Na_2$  в зависимости от концентрации атомов натрия  $N_{Na}$ . В скобках указаны оптически выстроенные уровни основного состояния.

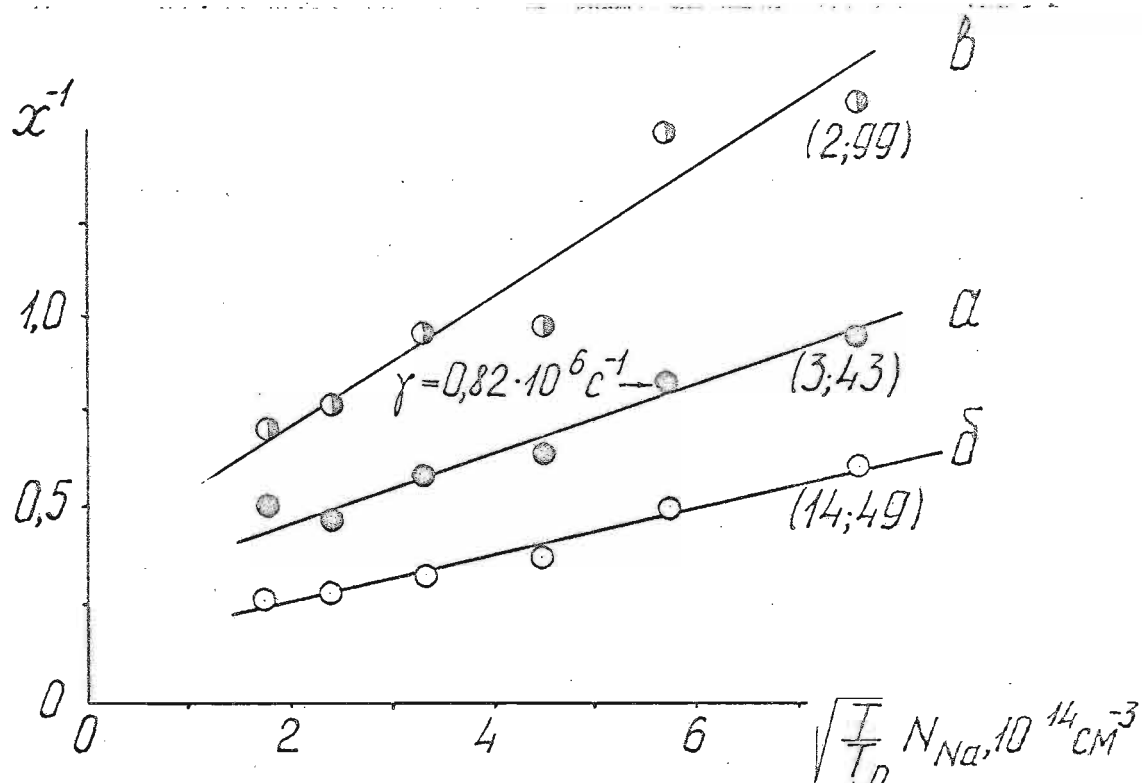


Рис. 2.2 Изменение параметра  $x^{-1} = \gamma / \nu_p$  в зависимости от концентрации атомов натрия  $N_{Na}$ . Условия те же, что на рис. 2.1.

влияние выстраивания, точнее, уменьшение нелинейности испускаемого потока относительно падающего с ростом давления паров. Результаты рис. 2.3 демонстрируют линейную зависимость; отметим, что линейной была также зависимость интенсивности от  $N_{\nu''J''}$  при ослабленном лазерном возбуждении. Это экспериментально подтверждает отсутствие сколько-нибудь заметного изменения квантового выхода флуоресценции, либо изменения константы поглощения  $V\rho$  в данной области концентраций частиц. С другой стороны, такая линейность является дополнительным свидетельством в пользу справедливости модели процесса оптической накачки в гл. I, в частности, выражения, связывающего степень поляризации  $P$  и параметры  $x$  и  $\chi$  в конкретных условиях эксперимента.

Значения  $V\rho$  определялись изложенным в предыдущем параграфе и П.3 методом для одной температуры. Например, определенная для случая рис. 2.3а,  $T = 592$  К,  $N_{Na} = 5.6 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$ , величина константы поглощения ( $\nu''=3, J''=43$ )  $\rightarrow$  ( $\nu'=6, J'=43$ ) оказалась равной  $V\rho = 1.1 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$ . Это позволило определить соответствующее значение константы релаксации:  $\gamma = x^{-1} \cdot V\rho = 0.82 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$ , см. рис. 2.2а. По наклону прямой, проведенной через экспериментальные точки рис. 2а, определена константа скорости релаксации для уровня  $Na_2$  (3,43) при соударениях с атомами натрия:  $k = 1.1 \cdot 10^{-9} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ . Эффективное сечение столкновений получено в предположении максвелловского распределения относительных скоростей сталкивающихся партнеров, принимая  $\langle \sigma(u)u \rangle = \sigma \bar{u}$ , (2.1), где  $u = \sqrt{8kT_0/\pi\mu}$   $\mu$  - приведенная масса. Отметим попутно, что множитель  $\sqrt{T/T_0}$  введен в значения оси абсцисс, рис. 2.2 с целью учесть, что  $\bar{u} \sim \sqrt{T}$ . Усредненный по серии подобных экспериментов результат составляет  $\sigma(3,43) = (1.1 \pm 0.4) \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ .



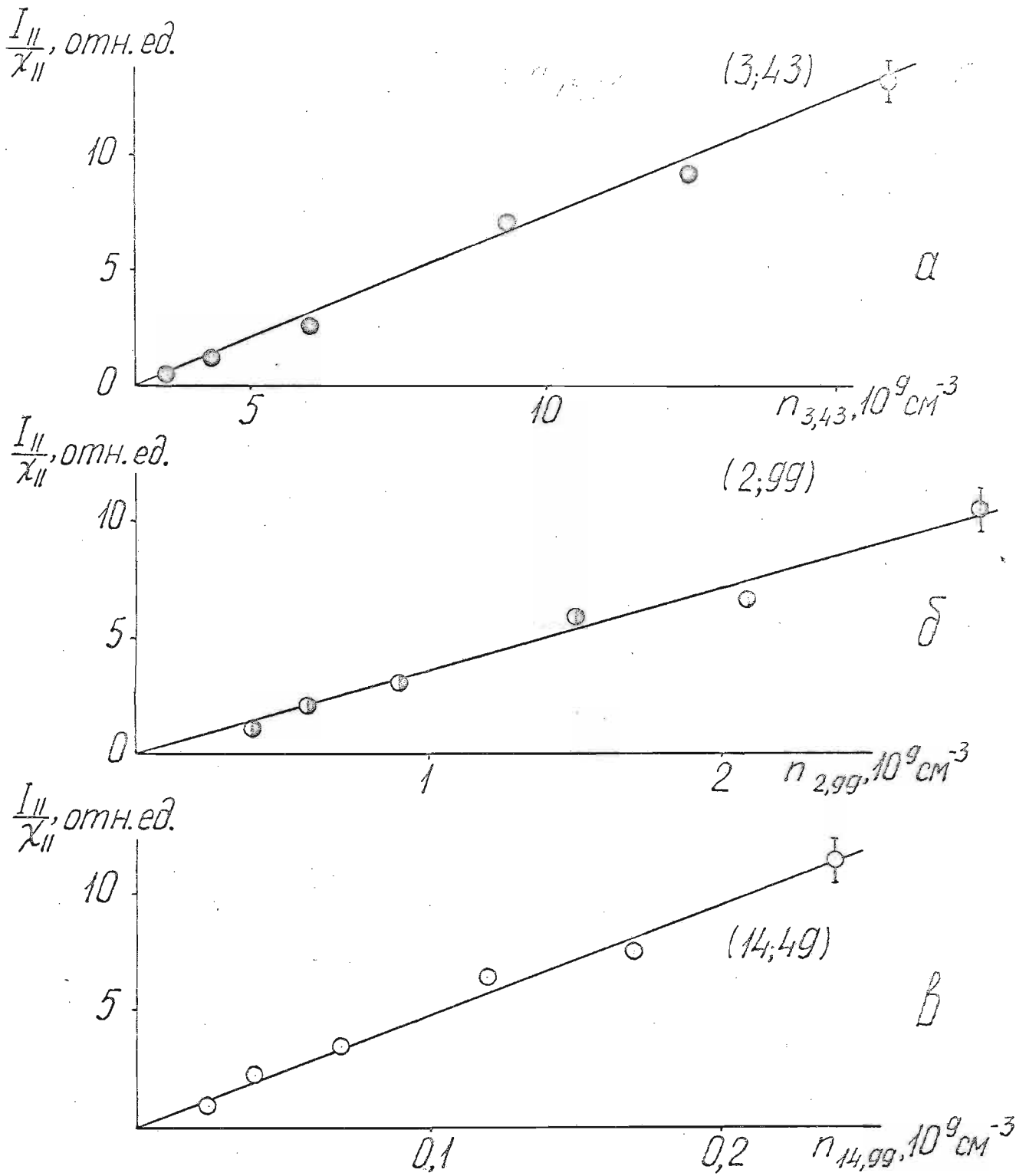


Рис. 2.3 Зависимость интенсивности флуоресценции от концентрации  $n_{\nu'', J''}$  молекул  $Na_2$  в  $(\nu'', J'')$ -состоянии.

Проведение измерений  $P$  от  $N_{Na}$  в условиях одновременного поглощения с трех колебательно-вращательных уровней, рис. 2.1, позволило, проведя лишь измерения относительных квантовых потоков соответствующих серий испускания, определить отношения эффективных сечений процессов. из отношений углов наклона прямых, рис. 2.2. Усредненные по сериям экспериментов значения отношений составляют:  $\sigma(14,49)/\sigma(3,43) = 1.6 \pm 0.4$ ,  $\sigma(3,43)/\sigma(2,99) = 0.9 \pm 0.2$ .

Укажем, что в первых наших экспериментах /20,21/, проведенных в 1973-74 гг., получено меньшее значение эффективного сечения  $\sigma(3,43) \sim 0.4 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ . Здесь следует учесть, что это значение получено при малом диаметре лазерного луча  $\sim 0,3$  мм (такая фокусировка была необходима для достижения нужной плотности мощности возбуждающего излучения  $\rho$  при использовании маломощного  $Ar^+$ -лазера - всего около 0.2 Вт на всех линиях). Это увеличивало ошибку в определении абсолютного квантового потока флуоресценции.

#### § 2.4 Константы и сечения релаксации $(v'', J'') K_2$ при столкновениях с атомами $K$ , $He$ , $Xe$ .

Аналогичным описанному в предыдущем параграфе методом определены значения констант и сечений процессов релаксации оптически выстроенного при селективном поглощении излучения 632.8 нм  $He-Ne$  лазера уровня  $(v''=1, J''=72) K_2$  (см. табл. I.2) при соударениях с собственными атомами  $K$ , а также с примесными атомами инертных газов  $He$  и  $Xe$ .

Релаксация  $K_2(1,72) + K$ . Измерялась степень поляризации  $P$  флуоресценции на линии  $Q_{16}$ , длина волны 688.4 нм. На рис. 2.4 приведены значения  $P$  в диапазоне концентраций

атомов калия  $N_K$  от  $1.8 \cdot 10^{14}$  до  $10^{15} \text{ см}^{-3}$ , соответствующих температурам от  $T_0 = 480 \text{ К}$  до  $T = 529 \text{ К}$ ; общая концентрация молекул  $K_2$  при этом составляла от  $1,7 \cdot 10^{11}$  до  $1,9 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$  /47/. Ширина луча лазера составляла 1,4 мм, выходная мощность 0.05 Вт. Соответствующие значения параметра  $\chi^{-1}$  в зависимости от  $\sqrt{T/T_0} N_K$  изображены на рис. 2.5. Зависимость интенсивности  $I_{II} / \chi_{II}$  от концентрации поглощающих молекул  $N_{v'', j''}$  на уровне ( $v''=1, j''=72$ ) также, как и для  $Ne_2$  (рис. 2.3), была линейной в пределах статистического разброса данных. Константа поглощения  $B_p$ , определенная в точке  $N_K = 2,7 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$ , рис. 2.5, имеет значение  $0,45 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$ , откуда соответствующее значение константы релаксации  $\gamma = 0,92 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$ , константа скорости релаксации при соударениях  $K_2 + K$  оказалась равной  $k = 1,4 \cdot 10^{-9} \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}$ . Усредненное по нескольким сериям экспериментов максвелловское сечение процесса составляет  $\sigma(K_2 + K) = (2 \pm 1) \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ .

Примесные газы. С меньшей погрешностью, чем для абсолютных значений сечений, удается определить отношения эффективных сечений при столкновениях с различными партнерами. С этой целью были проведены эксперименты с добавками инертных газов гелия и ксенона. В этом случае ячейка флуоресценции не отпаивалась от вакуумной системы. С помощью вакуумных затворов в ячейке создавалось необходимое давление инертного газа - порядка  $10^{-2} \div 10^{-1}$  тор - измеряемое деформационно-газоразрядным вакуумметром ВДГ-1.

Результаты исследования релаксации в процессах  $K_2 + K$ ,  $K_2 + He$ ,  $K_2 + Xe$  приведены на рис. 2.6 и табл. 2.1. Ширина лазерного луча составила 2.8 мм. По оси абсцисс рис. 2.6 отложены значения  $\sqrt{T/T_0} \cdot \Delta N$ . В случаях рис. 2.6б, в  $\Delta N$  есть

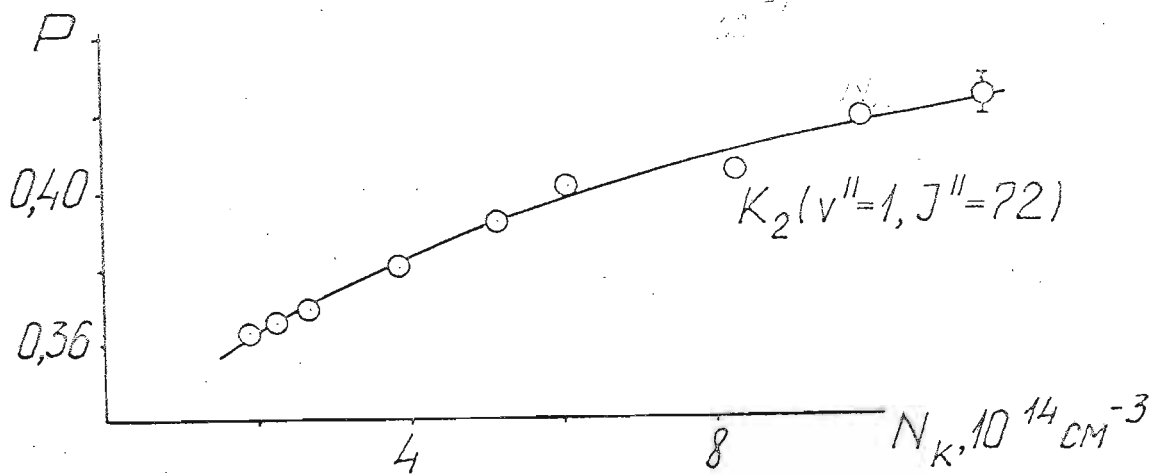


Рис. 2.4 Измеренные значения степени поляризации флуоресценции  $P$  в зависимости от концентрации  $N_K$  атомов калия.

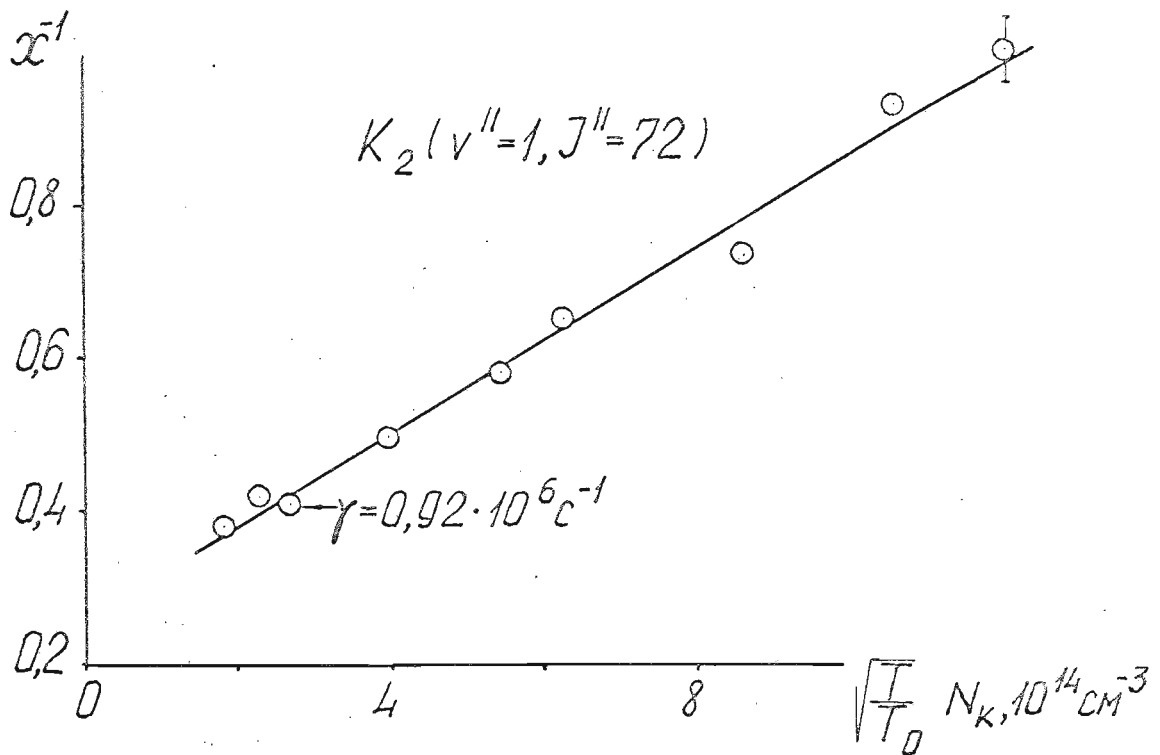


Рис. 2.5 Изменение параметра  $x^{-1}$  с ростом концентрации атомов калия  $N_K$ .

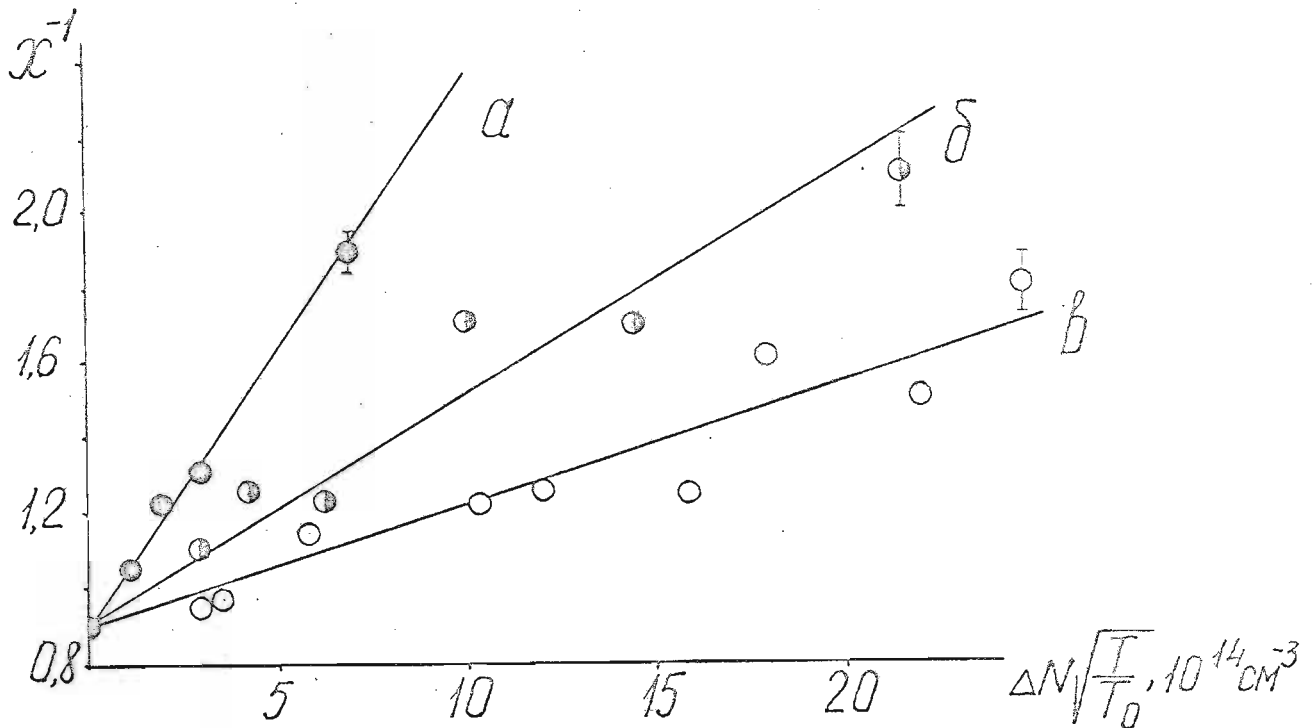


Рис. 2.6 Зависимость параметра оптической накачки  $x^{-1}$  от изменения концентрации атомов  $\Delta N$ .  
 а - при изменении концентрации  $K$ ,  
 б - концентрации  $He$ , в - концентрации  $Xe$ .

концентрация примесных атомов  $He$  и  $Xe$  при постоянной концентрации атомов  $K$ , соответствующей температуре  $T_0 = 497 K = const$  (при этом  $\sqrt{T/T_0} = 1$ ). В случае рис. 2.6а примесные газы отсутствовали, и величина  $\Delta N = N - N_0$  есть изменение концентрации атомов калия с ростом температуры паров от  $T_0 = 497 K$  до  $T = 526 K$ .

По отношению коэффициентов наклона соответствующих прямых с учетом различия относительных скоростей, определены отношения эффективных сечений релаксации оптически выстроенных в состоянии  $(I, 72) X^1\Sigma_g^+$  молекул  $K_2$  при столкновениях с  $K$ ,  $He$ ,  $Xe$ . Результаты приведены в табл. 2.1. Ошибки установлены при аппроксимации экспериментальных значений линейной зависимостью по методу наименьших квадратов.

отношения сечений	эксперимент, §2.4	расчет, § 2.5
$\sigma (K_2-He) / \sigma (K_2-Xe)$	$0.44 \pm 0.1$	0.39
$\sigma (K_2-He) / \sigma (K_2-K)$	$0.16 \pm 0.02$	0.21
$\sigma (K_2-Xe) / \sigma (K_2-K)$	$0.36 \pm 0.07$	0.55

Табл. 2.1 Отношения эффективных сечений релаксации оптически выстроенных  $K_2$  ( $v''=1, J''=72$ ) при столкновениях с атомами  $K, He, Xe$ .

Уровни (0,18) и (0,82). Как следует из табл. 1.2, линия 632.8 нм одновременно вызывает переход также с уровней (0,18) и (0,82)  $X'\Sigma_g^+$ . Большое различие вращательных квантовых чисел в принципе создает возможность изучения влияния  $J''$  на релаксацию. Однако здесь появились значительные экспериментальные трудности из-за малой эффективности поглощения, особенно с уровня (0,82), см. спектр рис. П.2.4. Кроме того, переход относится к  $P$ -типу, см. табл. 1.2, что также снижает точность определения  $\chi$ , см. § 1.6. Тем не менее была предпринята попытка определить отношение сечений  $\sigma(0,18)$  и  $\sigma(0,82)$  при столкновениях  $K_2 + K$ , определяя параметр  $\chi^{-1}$  из обработки зависимостей  $I_{\parallel, \perp}$  от мощности возбуждения  $P$ , см. рис. 1.22, снятых при различных концентрациях  $N_K$ . Результаты одного из экспериментов представляет график рис. 2.7, приводящий (с учетом отношения квантовых потоков) к  $\sigma(0,18) / \sigma(0,82) \sim \sim 2$ . Однако большая ошибка, порядка 50%, вряд ли позволяет интерпретировать полученное отношение.

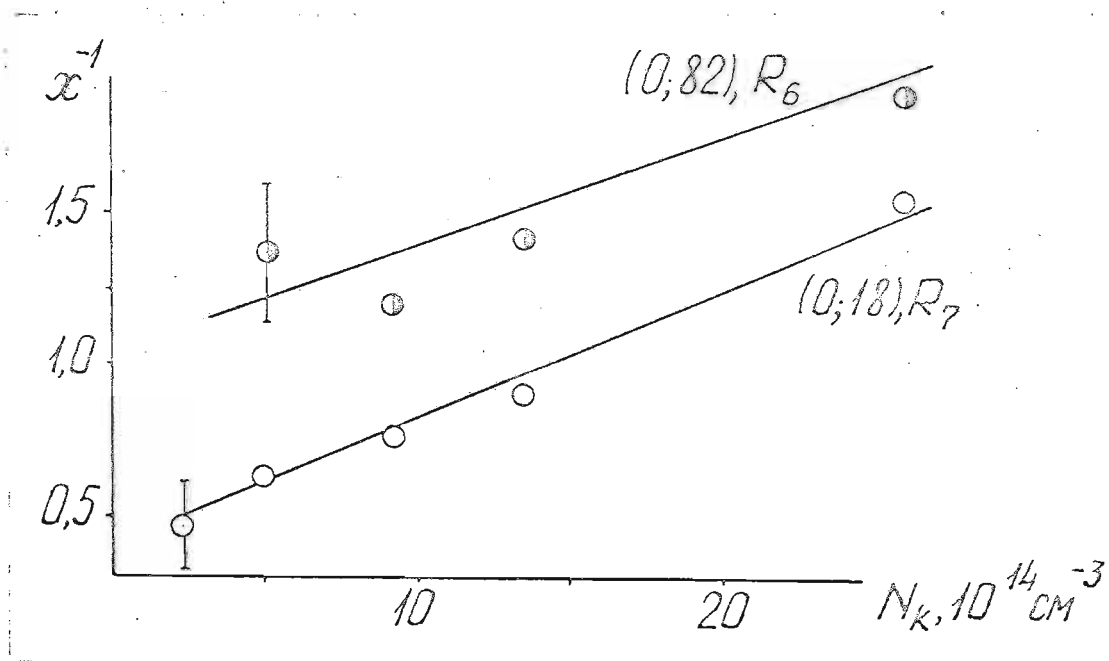


Рис. 2.7 Изменение параметра  $x^{-1}$  с ростом концентрации атомов калия  $N_K$ . На графике указаны исходные уровни  $(X^1\Sigma_g^+)_K_2$  и линии, на которых производилась регистрация.

## § 2.5 Теоретический расчет сечений в модели траекторий захвата

Проведение детального теоретического расчета параметров релаксации анизотропии  $(v'', J'')$ -уровней чрезвычайно сложно /48/ и, естественно, не входит в задачу данной работы. Однако представляется полезным провести по крайней мере упрощенный оценочный расчет, порядка величины сечений релаксации и их отношений для различных партнеров по столкновениям. Расчет основан на определении прицельного параметра захвата, используя представление о классических траекториях движущихся частиц /48, 49/.

Учитывая обсужденные в § 2.1 механизмы столкновительной релаксации выстраивания основного состояния  $(v'', J'')$  в моле-

кулярно-атомном газе, процесс можно обобщенно представить как результат равновесной бимолекулярной реакции в термических условиях



где  $X$  - молекула,  $Y$  - атом. При этом предполагается, что такая реакция приводит к неупругим процессам в молекуле, изменяя ее внутреннее состояние  $X \rightarrow X'$ , что неизбежно приводит и к релаксации анизотропии. Оценим эффективное сечение такой реакции при столкновениях  $Na_2 + Na$ ,  $K_2 + K$ ,  $He$ ,  $Xe$  в модели "сечений захвата" [27, 48, 49].

Гамильтониан сталкивающихся частиц в системе центра масс представляется в виде

$$H = \frac{\mu \dot{R}^2}{2} + \frac{M}{2\mu R^2} + U(R) \quad (2.4)$$

Здесь  $R$  - расстояние между сталкивающимися частицами  $X$  (молекула) и  $Y$  (атом), см. рис. 2.8,  $U(R)$  - зависящий от расстояния потенциал взаимодействия,  $\mu$  - приведенная масса,  $M$  - момент количества движения системы, равный  $\mu u b$ , где  $u$  - относительная скорость партнеров,  $b$  - прицельный параметр. В этом случае (2.4) содержит т.н. эффективный потенциал  $U_{eff} = U(R) + M^2/2\mu R^2$ , имеющий потенциальный барьер высотой  $E_c$  (рис. 2.8), возникающий в результате конкуренции притяжения между частицами на больших расстояниях  $U(R)$  и центробежного отталкивания  $M^2/2\mu R = Eb^2/R^2$ , если  $U(R)$  убывает быстрее, чем  $R^{-2}$ .

Анализ траекторий частицы  $Y$  в зависимости от их полной относительной кинетической энергии на бесконечности  $E = \mu u_\infty^2/2$  [48] показывает, что если  $E > E_c$ , рис. 2.8а, то возможно проникновение частиц во внутреннюю область  $U_{eff}$  в результате прохождения над барьером. Траектория такого движения, например,



(I) на рис. 2.8б, имеет вид спирали, которая закручивается до достижения некоторого минимального радиуса, т.е. происходит "захват", а затем вновь раскручивается, приводя в конце концов к разлету частиц. Параметры граничной траектории (2), рис. 2.8б, разделяющей спиральные (I) и неспиральные (3) траектории, можно найти из условия касания прямой  $U_{eff}(R_c, b_c) = E$  вершины центробежного барьера, рис. 2.8а.

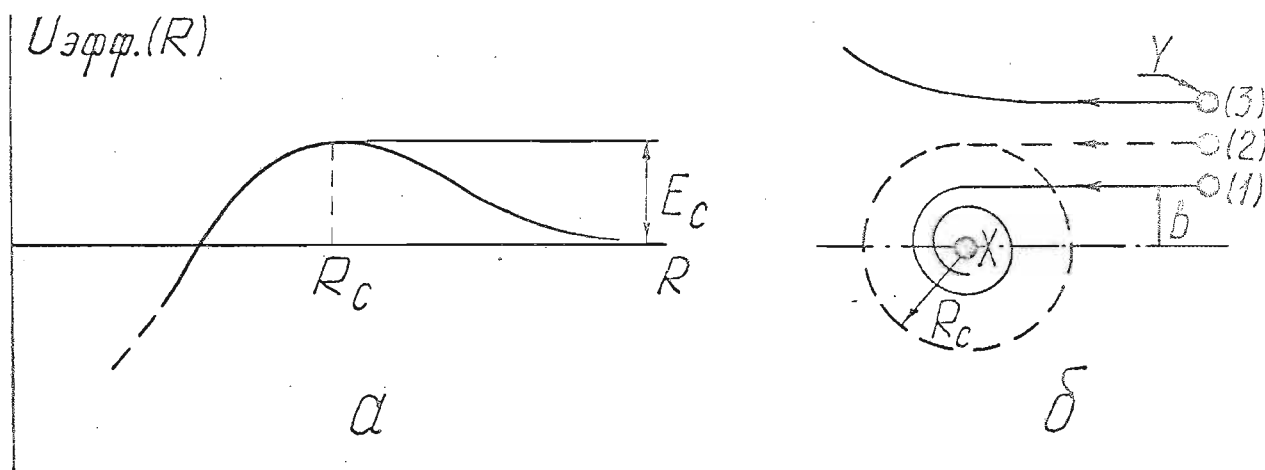


Рис. 2.8 (а) Характерный вид потенциальной энергии взаимодействия сталкивающихся частиц; (б) различные траектории: (I) – ведущая к захвату, (2) – граничная траектория, (3) – траектория, не ведущая к захвату.

Обозначив координату максимума барьера через  $R_c$ , а прицельный параметр, отвечающий граничной траектории, через  $b_c$ , запишем систему уравнений

$$\left. \begin{aligned} U_{eff}(R_c, b_c) &= E \\ \frac{\partial U_{eff}}{\partial R} \Big|_{R=R_c} &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (2.5)$$

решение которой дает величину  $b_c$  как функцию  $E$ .

Определим сечение интересующей нас реакции как сечение захвата  $\sigma_c = \pi b_c^2 W$ , где  $W$  — вероятность того, что релаксация произошла при захвате партнеров; считаем  $W=1$ . Здесь мы полагаем, что если  $E < E_c$ , т.е.  $b > b_c$ , то траектория мало отклоняется от прямой, и при этом реакция не происходит. В этом смысле получаемая оценка дает нижнюю границу сечений.

Итак, задача сводится к определению  $b_c$  из (2.5). Конкретный выбор потенциала  $U(R)$  на больших расстояниях  $R$  между партнерами, входящего в эффективный потенциал (2.4), зависит от взаимодействия, играющего ведущую роль в процессе столкновения. Для рассматриваемого случая единственным отличным от нуля потенциалом при усреднении по возможным направлениям межмолекулярной оси является ван-дер-ваальсовский потенциал  $U(R) = -c/R^6$ , где постоянную  $c$  удобно определить по формуле Слэтера-Кирквуда /94/

$$c = \frac{3\beta_1\beta_2 e\hbar}{2\sqrt{m_e} \left( \sqrt{\frac{\beta_1}{n_1}} + \sqrt{\frac{\beta_2}{n_2}} \right)}, \quad (2.6)$$

где  $\beta_1$  и  $\beta_2$  — поляризуемости сталкивающихся частиц,  $e$  и  $m_e$  — заряд и масса электрона, а  $n_1$  и  $n_2$  равны числу внешних электронов в атоме или молекуле, т.е.  $n_1=2$  для  $K_2, Na_2$ ,  $n_2=1$  для  $K, Na$ ,  $n_2=2$  для  $He$  и  $n_2=6$  для  $Xe$ .

Система (2.5) переходит в

$$\left. \begin{aligned} -\frac{c}{R^6} + E \frac{b_c^2}{R^2} &= E \\ \frac{6c}{R^7} - 2E \frac{b_c}{R^3} &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (2.7)$$

решение которой дает:

$$\left. \begin{aligned} b_c^2 &= \frac{3c}{E} R_c^{-4} \\ R_c &= \left(\frac{4c}{E}\right)^{1/6} \end{aligned} \right\} \quad (2.8)$$

Отсюда легко получить (в атомных единицах)

$$G_c(E) = (3\pi/2^{2/3})(c/E)^{1/3} \approx 5,98(c/E)^{1/3} \quad (2.9)$$

Далее в 2.9) необходимо произвести усреднение по  $E$  в предположении максвелловского распределения. Усредненное значение  $\langle G_c(E) \rangle$  тогда имеет вид

$$\begin{aligned} \langle G_c(E) \rangle &= \int_0^{\infty} G_c(E) \exp(-E/kT) (kT)^2 E dE \approx \\ &\approx 5,98(c/kT)^{1/3} \Gamma(5/3) \approx 5,4(c/kT)^{1/3} \end{aligned} \quad (2.10)$$

Конкретные вычисления по (2.10) произведены, принимая значения поляризуемостей  $\beta_1$  и  $\beta_2$  для атомов  $Na, K, He, Xe$ , приведенные в монографии /94/, а для основного  $X^1\Sigma_g^+$ -состояния молекул — из работы /95/.

Для сечений в парах натрия рассчитанная величина составляет:  $\langle G_c(Na_2 + Na) \rangle = 1,6 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ . Для случая паров калия расчет дает  $\langle G_c(K_2 + K) \rangle = 2,4 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ .

Рассчитанные отношения сечений релаксации  $(X^1\Sigma_g^+)K_2$  с атомами  $K, He, Xe$  приведены в табл. 2.1.

## § 2.6 Обсуждение результатов

Настоящий параграф посвящен обсуждению полученных в главе данных и установленных закономерностей. Напомним, что обсуждение наиболее вероятных каналов релаксации оптической накачки уже проведено в § 2.1.

В исследованной области давлений зависимость параметра  $x^{-1} = \gamma / V\rho$ , а, значит, и скорости  $\gamma$  (т.к.  $V\rho = const$ , что, // тоже установлено экспериментально) от концентрации атомов была линейной, см. рис. 2.2, 2.5, 2.6. Отсутствие излома или насыщения подтверждают возможность феноменологического описания процесса одной константой скорости  $k$  и соответствующим сечением  $\sigma$  в форме (2.1).

Абсолютные значения измеренных сечений велики и имеют порядок величины, равный  $10^{-14} \text{ см}^2$ . Экспериментальные погрешности обусловлены в первую очередь применением метода абсолютных квантовых потоков (§ 2.2 и ПЗ) для определения скорости поглощения. Установлено, что сечения соударений  $Na_2 + Na$  довольно слабо меняются при значительном изменении  $(V'', J'')$ . Так, при изменении вращательного квантового числа  $J''$  от 43 до 99 отношение соответствующих сечений оказалось в пределах ошибок равным единице:  $\frac{\sigma(3,43)}{\sigma(2,99)} = 0,9 \pm 0,2$ . Значительное увеличение колебательного квантового числа от  $V'' = 3$  до  $V'' = 14$  выявляет тенденцию к некоторому выходящему за пределы погрешностей росту сечений:  $\frac{\sigma(14,49)}{\sigma(3,43)} = 1,6 \pm 0,4$ . Интерпретация зависимости сечения от  $V''$  и  $J''$  затруднена, так как требуется знание детальных механизмов релаксации и проведение расчета, например, по статистической теории, т.е. по всем возможным конечным состояниям в зависимости от заданного начального состояния  $(V'', J'')$ .

Оказалось возможным провести лишь оценочный расчет порядка величины сечений, § 2.5, результаты которого хорошо совпали с экспериментом. Так, для паров натрия расчет дает  $\langle \sigma_c(Na_2 + Na) \rangle = 1,6 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ , а эксперимент  $\sigma(3,43) = (1,1 \pm 0,4) \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ . Для калия расчет приводит к  $\langle \sigma_c(K_2 + K) \rangle = 2,4 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ , а

эксперимент дает  $\sigma(1,72) = (2 \pm 1) \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ . Хотя столь хорошее совпадение несколько неожиданно для весьма упрощенного расчета, следует заметить, что для случая взаимодействия нейтрального атома в  $S$ -состоянии с не имеющей постоянного дипольного момента молекулой в  $^1\Sigma$ -состоянии представляется корректным выбор потенциала взаимодействия в виде  $U = -c/R^6$  для больших  $R$ . Кроме того, достаточно хорошо известны входящие в выражение (2.6) для константы  $C$  значения полярностей, хорошо известных для атомов /94/ и определенных недавно в /95/ также для молекул  $\text{Na}_2$  и  $\text{K}_2$  в  $^1\Sigma_g^+$ -состоянии, причем при температурах, близких к нашим. Разумными, по-видимому, оказались предположения о релаксации при траекториях, приводящих к захвату, т.е. к образованию и распаду трехатомного комплекса /88/, в процессе чего и происходят переходы между внутренними энергетическими состояниями.

В табл. 2.1 сравнены измеренные и рассчитанные относительные сечения релаксации оптического выстраивания  $^1\Sigma_g^+$  (1,72)

$\text{K}_2$  с различными партнерами - атомами  $\text{K}$ ,  $\text{He}$ ,  $\text{Xe}$ . Первое из измеренных отношений,  $\frac{\sigma(\text{K}_2 + \text{He})}{\sigma(\text{K}_2 + \text{Xe})}$ , в пределах ошибки совпадает с результатом расчета; остальные два, а именно

$\frac{\sigma(\text{K}_2 + \text{He})}{\sigma(\text{K}_2 + \text{K})}$  и  $\frac{\sigma(\text{K}_2 + \text{Xe})}{\sigma(\text{K}_2 + \text{K})}$ , несколько меньше.

Это может быть объяснено тем, что расчет отношений в § 2.5 не учитывает существования для  $\text{K}_2 + \text{K}$  (в отличие от  $\text{K}_2 + \text{He}$ ,  $\text{Xe}$ ) кроме  $T-R$ ,  $T-V$  обмена, химической реакции обмена атом-димер, см. § 2.1, имеющей согласно оценке /42/ сечение  $\leq 1,6 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ . Действительно, если при неупругих соударениях

в  $X^1\Sigma_g^+$ -состоянии из-за запрета по ядерному спину возможны вращательные переходы лишь между  $|\Delta J''| = 2, 4, \dots$ , см. /14/, то в результате химической реакции обмена с вероятностью 0,5 происходят переходы также и между орто- и парасостояниями, т.е.  $|\Delta J''| = 1, 2, 3$  и т.д. Это показано экспериментально для  $Na_2 + Na$  по ЯМР-сигналу в работе /46/. Данное явление приводит к увеличению суммарного сечения  $\sigma (K_2 + K)$  по отношению к  $\sigma (K_2 + He, Xe)$ ; если попытаться учесть эффект введением статистического множителя, теоретические отношения приближаются к экспериментальным.

Сопоставим данные главы с немногими имеющимися в литературе результатами других авторов. Имеется единственная уже цитированная ранее работа /32/, в которой определены сечения релаксации оптически выстроенного уровня ( $v'' = 3, J'' = 43$ )  $Na_2$  при соударениях с примесными газами  $He, Ne, Ar, Kr, Xe, H_2, O_2, CH_4, N_2$ , имеющие величину от  $0,14 \cdot 10^{14} \text{ см}^2$  до  $0,45 \cdot 10^{14} \text{ см}^2$ .

Недавно выполнена работа группы А.Шавлова, США /96/, в которой реализован метод измерения времени репопуляции заселенности (или "заполнения") ( $v'', J''$ )-уровня  $Na_2$ , опустошенного вызывающим  $X \rightarrow B$  переход мощным импульсом неполяризованного излучения лазера на красителе. В эксперименте измерялась зависимость коэффициента поглощения слабого пробного импульса другого лазера на красителе, вызывающего  $X \rightarrow A$  переход с того же ( $v'', J''$ )-уровня, от времени задержки пробного импульса. Снятая сканированием времени задержки экспоненциальная зависимость поглощения позволяет определить характерное время восстановления заселенности. В /96/ приводится обратное время (скорость) релаксации, равное  $(1,54 \pm 0,9) \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$  для уровня (0,41)  $Na_2$  при температуре паров натрия 603 K, диаметре лазерного луча 2 мм. В эксперименте настоящей работы линейная зависимость, рис.2.2а, приводит для такой температуры к значению  $\gamma = 1,3 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$  при

диаметре луча 1,8 мм. Итак, обратное время репопуляции (0,41)  $Na_2$  в /96/ практически совпало с измеренным нами ранее в аналогичных условиях обратным временем релаксации оптического выстраивания (3,43)  $Na_2$ , что еще раз подтверждает тезис о релаксации последнего в неупругих процессах. Авторы /96/ также не обнаружили различия в скоростях релаксации заселенности уровней (0,41) и (0,17)  $Na_2$ ; ими зарегистрирована линейная зависимость скорости релаксации от давления примесного газа  $Ar$ , однако сечение столкновений не определялось из-за большой неоднородности температур поглощающей ячейки с парами натрия.

Экстраполяция прямой рис. 2.2а к нулевым концентрациям приводит к значению аддитивного члена  $\gamma_0$  (см. 2.1), равному  $0,3 \cdot 10^6 \text{с}^{-1}$ , что неплохо согласуется с оценкой среднего обратного времени пробега через луч  $\sim 0,2 \cdot 10^6 \text{с}^{-1}$ .

Итак, измерены в настоящей главе значения суммарных констант и сечений релаксации продольного оптического выстраивания ряда  $(v'', J'')$ -уровней  $Na_2$  и  $K_2$  в тепловом резервуаре атомов. Анализ установленных закономерностей и литературных данных позволяет считать, что такая релаксация происходит в результате индуцированных столкновениями переходов между колебательно-вращательными подуровнями и пространственной диффузии молекул через лазерный луч. Дополнительные соображения по этому вопросу будут высказаны при сравнении с данными, полученными из эффекта Ханле в главе III, § 3.5, табл. 3.1.

## Г Л А В А III

ЭФФЕКТ ХАНЛЕ УРОВНЕЙ  $(v'', J'')$ ОСНОВНОГО СОСТОЯНИЯ  $Na_2, K_2$ .

## § 3.1. Эффект Ханле в атомных и молекулярных системах

## а) а т о м ы

Еще в 1923 году Р. Вуд и А. Эмлет /97/ обнаружили влияние магнитного поля на характер поляризации резонансного излучения. В 1924 году В. Ханле /98/ исследовал подробно магнитную деполаризацию резонансной флуоресценции ртути и построил классическую теорию эффекта, позднее названного "эффектом Ханле".

По теории Ханле, моделирующей излучающий атом затухающим диполем, прецессирующим в магнитном поле /18,62,98/, степень линейной поляризации резонансного излучения  $P$  при наблюдении вдоль магнитного поля  $\vec{H}$ , рис. 3.1, меняется по закону

$$P = P_0 \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + 4\omega^2},$$
 где  $P_0$  - степень поляризации при  $H=0$ ,  $\omega = -\mu_0 g H / \hbar$ ,  $\mu_0$  - магнетон Бора,  $g$  - фактор Ланде,  $\Gamma$  - естественная ширина уровня.

Квантово-механическая теория эффекта была создана Г. Брейтом /99/ в 1933 г.

В 1959 году Ф. Коулгроув с сотрудниками обнаружил явление пересечения уровней в ненулевом поле /100/, и в дальнейшем эффект Ханле был интерпретирован как частный случай явления пе-



ресечения энергетических уровней в нулевом магнитном поле, см. обзоры /62,69,101,102/.

Явление пересечения уровней принадлежит к группе интерференционных явлений /103/ и проявляется в изменениях характеристик излучения атомов, связанных с вырождением уровней. Такие процессы чрезвычайно широко применяются в настоящее время к атомам, особенно для измерения атомных констант – времен жизни, факторов Ланде, констант СТС, констант деполаризующих столкновений и др., чему уже к 1975 году по данным М.П.Чайки /62/ было посвящено более 150 работ. Таким образом, метод занял прочное место в спектроскопии атомов. Это стало возможным из-за таких существенных особенностей метода, как отсутствие влияния доплеровского уширения – интерференция состояний связана только с характеристиками излучающих уровней и несет информацию об их естественной ширине. Кроме того, высокая точность определения атомных констант достигается сравнительно простой (по сравнению, например, с нелинейной лазерной абсорбционной спектроскопией /104/). экспериментальной техникой.

Итак, эффект Ханле возбужденного состояния атомов может быть интерпретирован как результат интерференции вырожденных зеemanовских подуровней в нулевом магнитном поле. Из-за снятия вырождения внешним полем наблюдаются имеющие резонансный характер при  $H = 0$  изменения в пространственном распределении излучения и степени его поляризации. Чтобы атомные состояния интерферировали, их необходимо возбудить в когерентную суперпозицию состояний, что сопровождается выстраиванием и (или) ориентацией. Для этого необходимо, чтобы падающий свет был представлен суперпозицией компонент с  $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$  и  $\pi$ -поляризациями. В возбужденном состоянии это достигается при любом анизотропном способе возбуждения, при котором ось квантования

не направлена по оси симметрии системы.

В полной аналогии с эффектом Ханле на атомах в возбужденном состоянии характер поглощения света атомами должен испытывать изменения и при пересечении зеемановских подуровней основного состояния. Интерференция в основном состоянии возникает при его оптической накачке светом когерентной поляризации. Впервые эффект пересечения уровней на атомах в основном состоянии наблюден Г. Демельтом /106/ и интерпретирован позднее Е. Б. Александровым и В. А. Ходовым /106/ как разрушение ориентации поперечными магнитными полями. Описание явления может быть проведено как в терминах матрицы плотности, так и в наглядной модели прецессии вектора намагниченности вокруг поперечного магнитного поля, см., например, /13, 62, 69, 101, 102/. Так как время жизни оптически накачанной системы в основном состоянии может быть весьма большим, то контуры сигналов могут быть очень узкими, что привело к важному практическому применению — созданию рекордных по своей чувствительности магнитометров (до  $10^{-10}$  Гс).

#### б) двухатомные молекулы

В последнее время благодаря прогрессу лазерной спектроскопии появился ряд работ по экспериментальному изучению эффекта Ханле возбужденных состояний молекул. Одной из первых была работа Р. Зеира с сотрудниками на  $B^1\Pi_u$ -состоянии  $Na_2$ , /77/ в 1969 году. Позднее были выполнены эксперименты на других гомоядерных двухатомных молекулах:  $J_2$  /107/,  $Se_2$  /108/,  $N_2$  /109/,  $H_2$  /110/,  $Br_2$  /111/. Эксперименты, как правило, посвящены определению времени жизни  $(v', J')$ -уровней возбужденных состояний. Так, для уровня  $Na_2$  ( $v'=10, J'=12$ )  $B^1\Pi_u$ -состояния в /77/ было измерено практически самое короткое время

спонтанного распада -  $6,41 \cdot 10^{-9}$  с. Для  $J_2$  ( $v'=43, J'=12$  и  $16$ )  $B^3\Pi_{0u^+}$  авторами /107/ определено  $\tau = 2,3 \cdot 10^{-6}$  с. Особенности экспериментов на двухатомных молекулах в силу малой величины  $g$ -фактора для больших вращательных чисел и коротких времен жизни, являются весьма большие ширины сигналов. Так,  $\Delta H_{1/2} = 1360$  Гс для молекулы  $Na_2$ ,  $J'=12$  /77/, т.е. в экспериментах требуется наличие значительных напряженностей магнитного поля.

Классическое и квантовомеханическое (аналогично подходу Брейта) рассмотрение эффекта Ханле возбужденных состояний молекул типа симметричного волчка было проведено уже в 1966 году Р.Зеиром /70/. Для "традиционной" геометрии возбуждения - наблюдения, когда магнитное поле направлено вдоль оси наблюдения перпендикулярно линейно-поляризованному возбуждению, рис. 3.1, выражения для зависимости степени поляризации флуоресценции от  $H$  получаются умножением формул последнего столбца табл. I.1 (классический) или предпоследнего столбца (квантовомеханический подход) на  $\Gamma^2 / [\Gamma^2 + (2g_J \mu_0 H / \hbar)^2]$ . Отсюда следует, что для очень больших вращательных чисел  $J'$  классические и квантовомеханические выражения совпадают, причем для  $Q1, Q1$ -перехода уже  $J' \geq 5$  являются достаточно большими

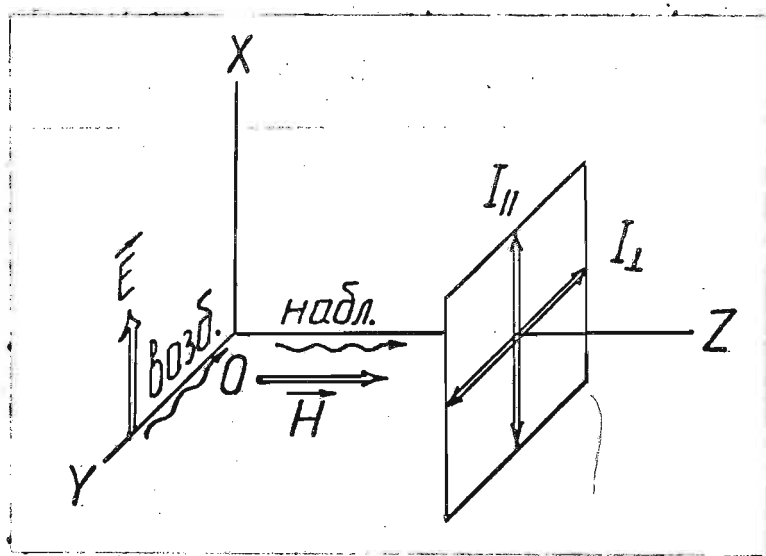


Рис. 3.1 Обычная схема наблюдения эффекта Ханле.

для практически полного совпадения, см. § I.3.

Однако применение лазерных источников для наблюдения эффекта Ханле двухатомных молекул требует, как уже подчеркивалось ранее в § I.3, анализа возможных нелинейных эффектов из-за монохроматичности и большой плотности мощности возбуждения. В работе /II2/ наблюдалось уширение контура Ханле  $J_2$ , уровня  $B^3\Pi_{0u}^+$ -состояния до 30% при увеличении плотности мощности возбуждения  $\rho$  линией 530.9 нм  $Kr^+$ -лазера от 0.02 Вт·см<sup>-2</sup> до 1 Вт·см<sup>-2</sup>. Хотя в этой же работе авторы решают уравнение матрицы плотности в тензорном представлении с помощью IV порядка теории возмущений по лазерному полю для атома  $Ne$ , они отмечают, что решение для молекулы  $J_2$  не может быть получено из-за больших значений углового момента  $J' > 10$ . По этой причине уширение интерпретируется лишь качественно как результат невыполнения условия возбуждения широкой линией, см. § I.3 (для  $J_2: 2 \Gamma \sim 0,2 \text{ МГц} /107/$ , а  $\Delta \omega \sim 70 \text{ МГц}$ ). Авторы не исследовали также отклонение формы контура сигнала от лоренцевской, которое должно возникать из-за индуцированной лазерным излучением связи с основным состоянием, отмечая, что эффект Зеемана основного состояния  $J_2$  не изучен.

В опубликованных в 1973 году работах /II3, II4/ наблюдалось увеличение интенсивности флуоресценции  $J_2$  с ряда  $v', J'$ -уровней  $B^3\Pi_{0u}^+$ -состояния, возбужденных линиями  $Ar^+$  и  $Kr^+$  лазеров ( $\rho = 1 \div 10 \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$ ), в магнитном поле  $\approx 10^3 \text{ Гс}$ . Эффект исчезал при ослаблении возбуждающего излучения. Относительное увеличение сигнала достигало 30% по амплитуде и имело место при различных ориентациях вектора  $\vec{E}$  линейно-поляризованного возбуждения относительно внешнего статического поля  $\vec{H}$ , в том числе при  $\pi$ -возбуждении,  $\vec{E} \parallel \vec{H}$ . В обеих работах эффект оказывается существенно независимым от того, какая компонента

поляризации наблюдалась; об измерении степени поляризации не сообщается. Авторы /II3,II4/ пришли к заключению, что эффект не является проявлением сигнала Ханле возбужденного либо основного состояния. В /II4/ явление трактуется как сигнал пересечения провалов в распределении по скоростям, вызванное зеemanовским сканированием (см. об этом /66, I04/), что возможно для  $J_2$  из-за явного невыполнения приближения возбуждения широкой линией.

Из обзора настоящего параграфа можно сделать вывод, что если эффект Ханле в основном состоянии атомов уже достаточно хорошо изучен теоретически и экспериментально, то сообщения о наблюдении эффекта Ханле основного электронного состояния двухатомных молекул вообще отсутствовали в литературе.

В силу этого, а также с целью дальнейшего развития метода оптической накачки основного состояния, задачей одного из этапов данной работы (см. § I.2д) было обнаружить эффект Ханле  $(v', J')$ -уровня основного состояния через его проявление во флуоресценции с возбужденного уровня. В случае успеха предстояло также исследовать явление и применить его для измерения констант релаксационных процессов в основном электронном состоянии щелочных молекул  $Na_2, K_2$ .

### § 3.2 Теоретическое описание эффекта Ханле основного состояния двухатомных молекул

В процессе оптической накачки при селективном поглощении света когерентной поляризации следует ожидать индуцированного лазерным излучением взаимодействия между поперечным магнитному полю выстраиванием уровней возбужденного и основного состояний, что должно проявляться в наложении на эффект Ханле возбужденного уровня эффекта Ханле основного уровня. Благодаря этому по-

$$\dot{C}_a = V\rho[C_b - C_a]C(\vartheta, \varphi) - A_5 C_b - \omega_a \frac{dC_a}{d\varphi}$$

следний становится доступным наблюдению в молекулярной флуоресценции, возбужденной накачивающим лучом.

Как уже отмечалось, теоретическое описание явления в аппарате неприводимых тензорных операторов с применением теории возмущения по лазерному полю встречает значительные трудности для больших угловых моментов  $J > 10$ . По этой причине для расчетов экспериментально наблюдаемых величин использован аппарат  $|\Omega\rangle$ -представления /63/, см. § I.4. Решаются балансные уравнения в ненулевом внешнем магнитном поле  $H$  в условиях используемой геометрии эксперимента. Расчетные  $H$ -зависимости степени поляризации флуоресценции описывают суперпозицию контуров Ханле основного и возбужденного состояний, включая индуцированное накачивающим возбуждением уширение и возникновение дополнительного узкого резонанса из-за связывания с гексадекапольным моментом основного состояния. Интерпретация зависимости проведена также используя связь между  $|\Omega\rangle$ -представлением и тензорным  $\mathcal{H}, \mathcal{Q}$ -представлением.

а)  $|\Omega\rangle$  - представление

Система (I.15) уравнений для элементов матрицы "квази-плотности вероятности"  $C_\alpha = C_\alpha(\vartheta, \varphi)$  во внешнем магнитном поле имеет вид /63/

$$\dot{C}_a = V\rho[C_b - C_a]C(\vartheta, \varphi) + A_5 f_{ba} C_b + \lambda - \gamma C_a - \omega_a \frac{dC_a}{d\varphi} \quad (3.1)'$$

$$\dot{C}_b = -V\rho[C_b - C_a]C(\vartheta, \varphi) - A C_b - \omega_b \frac{dC_b}{d\varphi} \quad (3.1)''$$

Здесь  $\omega_\alpha$  - ларморова частота прецессии основного  $\alpha = a$  и возбужденного  $\alpha = b$  уровней, и член  $-\omega_\alpha \frac{dC_\alpha(\vartheta, \varphi)}{d\varphi}$  описывает вклад из-за вращения магнитного момента вокруг поля  $\vec{H}$ . Действительно, уравнение сохранения плотности вероятности  $dC_\alpha/dt + \omega_\alpha dC_\alpha/d\varphi = 0$  приводит к  $C_\alpha(\vartheta, \varphi, t) = C_\alpha(\vartheta, \varphi - \omega_\alpha t, 0)$ , то

есть описывает прецессию с частотой  $\omega_L$ , которая определяется как  $\omega_L = -g_L \mu_0 H / \hbar$ ,  $g_L$  - фактор Ланде,  $\mu_0$  - магнетон Бора.

Нашей целью является стационарное решение (3.1), т.е.

$\dot{\sigma}_a(\nu, \varphi) = 0$ . Единственность решения системы дифференциальных уравнений первого порядка обеспечивается граничным условием периодичности  $\sigma_a(\nu, \varphi + 2\pi) = \sigma_a(\nu, \varphi)$ . Решение в виде явного аналитического выражения легко получить для предельных случаев  $H=0$  и  $H \rightarrow \infty$ , далее обозначаемого как  $H \gg$ . Случай  $H=0$  уже рассмотрен в § I.4. Приведем решение (3.1) в пределе больших значений  $H \gg$ , при которых  $\omega_L \gg \gamma$ , но при этом будем считать, что  $\omega_B \ll A$ , то есть пренебрегать магнетизмом возбужденного уровня  $b$ . Такое рассмотрение позволяет выяснить, как проявляется "чистый" сигнал Ханле основного  $a$ -состояния и рассчитать его амплитуду. Для простоты ограничимся приближениями  $A \gg B\rho \sim \gamma$ ,  $f_{ba} \ll 1$ , т.е. пренебрежем заселением уровня  $a$  спонтанными и вынужденными переходами, см. § I.3. Тогда система (3.1) распадается и получаем

$$0 = -B\rho C(\nu, \varphi) \sigma_a + \lambda - \gamma \sigma_a - \omega_a \frac{d\sigma_a}{d\varphi}. \quad (3.2)$$

Так как  $\omega_a \gg \gamma \sim B\rho$ , можно считать, что вращение усредняет  $\sigma_a(\nu, \varphi)$  по  $\varphi$  в полях  $H \gg$ , и  $\frac{d\sigma_a(\nu, \varphi)}{d\varphi} = 0$ . Усредненные значения плотности обозначим  $\langle \sigma_a(\nu, \varphi) \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \sigma_a(\nu, \varphi) d\varphi$ . Зависимость углового коэффициента поглощения  $C(\nu, \varphi)$  от  $\varphi$  также пропадает, и  $\langle C(\nu, \varphi) \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} C(\nu, \varphi) d\varphi$ .

Чтобы перейти к экспериментально наблюдаемым величинам, следует задаться конкретной геометрией возбуждения - наблюдения и ветвью молекулярного перехода. Эксперименты проведены при возбуждении линейно-поляризованным вдоль оси наблюдения светом, рис. 3.2. В этом случае степень поляризации  $P =$

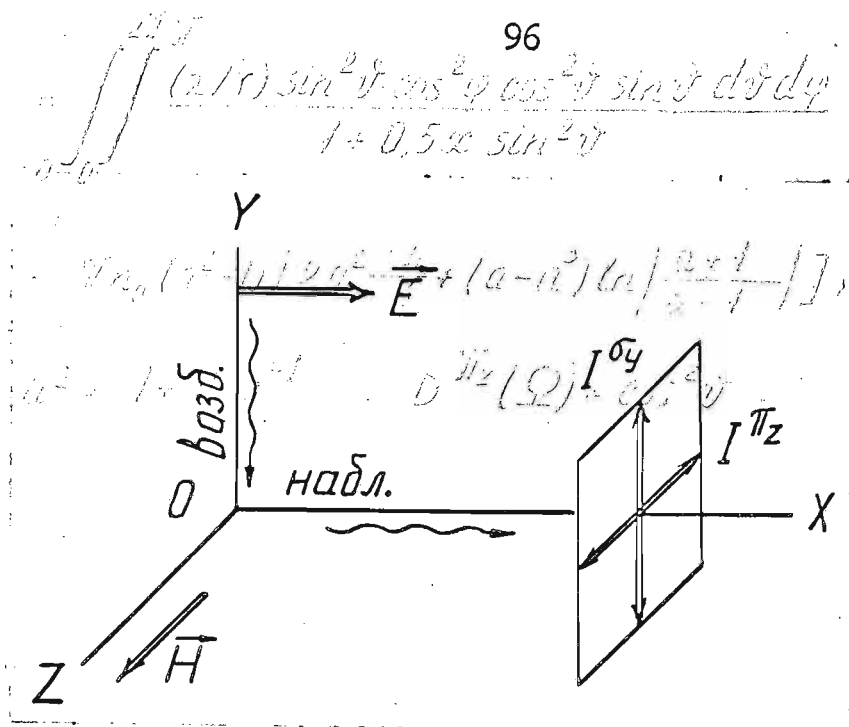


Рис. 3.2 Схема возбуждения и наблюдения  
флуоресценции в магнитном поле

$= (I^{\pi_z} - I^{\sigma_y}) / (I^{\pi_z} + I^{\sigma_y}) = 0$ , если  $H = 0$ . Обоснование такой геометрии будет дано несколько позже, см. § 3.3. Для  $Q$ -ветви поглощения и излучения угловой коэффициент поглощения  $C^{\sigma_x}(\vartheta, \varphi) = \sin^2 \vartheta \cos^2 \varphi$ , а  $\langle C^{\sigma_x}(\vartheta, \varphi) \rangle = \frac{1}{2} \sin^2 \vartheta$ , и решение (3.2) для  $H \gg$  дает

$$\sigma_a(\vartheta) = \frac{\lambda/r}{1 + 0,5x \sin^2 \vartheta} \quad (3.3)$$

Переходя к выражениям для интенсивностей флуоресценции  $I^{\pi_z}$ ,  $I^{\sigma_y}$ , рис. 3.2, получаем (подобно § 1.4)

$$\begin{aligned} I^{\pi_z} &= \int_{(\Omega)} \sigma_a(\vartheta) C^{\sigma_x}(\Omega) D^{\pi_z}(\Omega) d\Omega = \\ &= \int_0^{\pi/2} \int_0^{2\pi} \frac{(\lambda/r) \sin^2 \vartheta \cos^2 \varphi \cos^2 \vartheta \sin \vartheta d\vartheta d\varphi}{1 + 0,5x \sin^2 \vartheta} = \end{aligned} \quad (3.4)$$

$$= \pi n_0 (a^2 - 1) \left[ 2a^2 - \frac{4}{3} + (a - a^3) \ln \left| \frac{a+1}{a-1} \right| \right],$$

где  $a^2 = 1 + 2x^{-1}$ ,  $D^{\pi_z}(\Omega) = \cos^2 \vartheta$ . Аналогично



$$I_{\sigma y} = \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} \frac{(\lambda/\gamma) \sin^2 \vartheta \cos^2 \varphi \sin^3 \vartheta \sin^2 \varphi d\vartheta d\varphi}{1 + 0,5x \sin^2 \vartheta} =$$

$$= \frac{\pi n_0}{4} (a^2 - 1) \left[ 2 + (a^{-1} - a) \ln \left| \frac{a+1}{a-1} \right| \right] - \frac{I_{\pi z}}{4}. \quad (3.5)$$

Следуя модели релаксации § 1.3,  $\lambda = \gamma G_a^0 = \gamma n_0$ .

Рассчитанная из (3.4) и (3.5) степень поляризации зависит только от параметра накачки  $x$ , см. рис. 3.3, а. При  $x \neq 0$  появляется положительная степень поляризации, что и является в данной схеме (рис. 3.2) проявлением "чистого" эффекта Ханле основного уровня  $a$ . Легко показать, что эффект Ханле от возбужденного уровня  $b$ , если принять  $\omega_b \gg A$ ,  $x \rightarrow 0$ , привел бы к отрицательной степени поляризации  $P_{(H \rightarrow \infty)} \rightarrow -\frac{1}{3}$ , см. ниже (3.18).

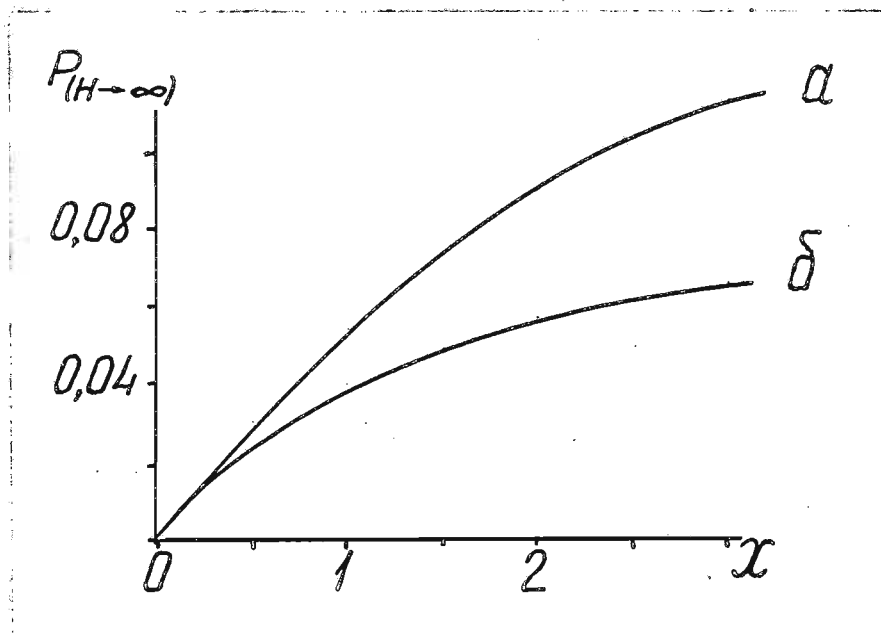


Рис. 3.3 Рассчитанная степень поляризации флуоресценции

$$P_{(H \rightarrow \infty)} = (I_{\pi z} - I_{\sigma y}) / (I_{\pi z} + I_{\sigma y}) \quad \text{в пределе } H \gg ;$$

геометрия указана на рис. 3.2.

$a$  - тип перехода (а);  $P, R$  - тип перехода (б).

Подобные выражения для  $I^{\pi z}$ ,  $I^{\sigma y}$  в случае  $P$ - либо  $R$ -ветви поглощения и излучения имеют вид

$$I^{\pi z} = \pi n_0 (a^2 - 1) \left[ (a^2 - \frac{1}{3}) + (-a^3 + a^{-1}) \operatorname{arctg} a^{-1} \right] \quad (3.6)$$

$$I^{\sigma y} = \frac{\pi n_0}{4} (a^2 - 1) \left[ (-a^2 + \frac{19}{3}) + (a^3 - 6a + \frac{1}{a}) \operatorname{arctg} a^{-1} \right] \quad (3.7)$$

Зависимость  $P_{H \gg} (x)$  для этого случая представлена на рис. 3.3, б.

Получим решение системы (3.1) для стационарных условий  $\partial_{\alpha}(\vartheta, \varphi) = 0$  при произвольных значениях магнитного поля  $H$ . Перепишем (3.1) в условиях геометрии рис. 3.2, принимая  $Q$  - ветвь поглощения, в виде  $(\partial_{\alpha}(\vartheta, \varphi) = \partial_{\alpha})$ :

$$\omega_a \frac{d\sigma_a}{d\varphi} + \omega_b \frac{d\sigma_b}{d\varphi} + (A - A_s f_{ba}) \sigma_b - \lambda + \gamma \sigma_a = 0 \quad (3.8)'$$

$$\omega_b \frac{d\sigma_b}{d\varphi} + A \sigma_b + B \rho \sin^2 \vartheta \cos^2 \varphi (\sigma_b - \sigma_a) = 0 \quad (3.8)''$$

где (3.8)' получено сложением (3.1)' и (3.1)'' . Воспользуемся предложенным в /63/ способом решения разложением матрицы плотности  $\partial_{\alpha}(\vartheta, \varphi)$  в ряд Фурье с четными членами по переменной  $\varphi$

$$\partial_{\alpha}(\vartheta, \varphi) = \alpha_0 + \sum_{n=1}^{\infty} [\alpha_{2n}(\vartheta) e^{2in\varphi} + \alpha_{2n}^*(\vartheta) e^{-2in\varphi}], \quad (3.9)$$

где  $\alpha_{2n} = a_{2n}, b_{2n}$ . Подставив (3.9) в (3.8)', найдем связь между коэффициентами разложения  $a_{2n} = -z_n b_{2n}$  для  $n \neq 0$ ,  $A = A_s$ ,

$$z_n = \frac{(A/\gamma)(1 - f_{ba}) + 2in(\omega_b/\gamma)}{1 + 2in(\omega_a/\gamma)}, \quad (3.10)$$

а в случае  $n=0$

$$a_0 = \lambda/\gamma - z_0 b_0. \quad (3.11)$$

Далее (3.9), (3.10), (3.11) подставляются в (3.8)'' . Приравнивая к нулю члены, не содержащие  $\varphi$ , выразим  $b_0$

$$b_0 = \frac{\lambda/\gamma}{2(A/\gamma)(x \sin^2 \vartheta)^{-1} + (1 + z_0) + \operatorname{Re}[R_0(1 + z_1)]}, \quad (3.12)$$

где введено обозначение  $b_2 = R_0 b_0$ . Приравнивая коэф-

Коэффициенты при членах  $e^{2i\varphi}$ , т.е. с  $n=1$ , и вводя  $b_4 = -R_1 b_2 = -R_0 R_1 b_0$ , получим уравнение, содержащее  $b_0, R_0, R_1, \lambda$ ; сложив его с (3.12) так, чтобы при этом исчезло  $\lambda$  и сократив на  $b_0$ , получаем возможность выразить  $R_0$  через  $R_1$ , см. Приложение 4 (П.4). Дальнейшие приравнения коэффициентов при  $e^{2in\varphi}$ , где  $n > 1$ , уже дают однотипные уравнения, из которых выражается  $R_{n-1}$  через  $R_n$  (здесь обозначено  $R_n = -b_{2n+2}/b_{2n}$ ,  $n \geq 1$ ):

$$R_{n-1} = \frac{1+z_{n-1}}{4(\gamma x \sin^2 \vartheta)^{-1}(A+2in\omega_b) + 2(1+z_n) - R_n(1+z_{n+1})} \quad (3.13)$$

Таким образом, для  $n > 1$  получена рекуррентная формула коэффициентов  $R_n$ . Смысл такого подхода ясен из следующего. Целью подхода является вычисление интенсивностей  $I^{\pi_2}, I^{\sigma_4}$  флуоресценции (геометрия рис. 3.2):

$$\begin{aligned} I^{\pi_2} &= \int_{(\Omega)} G_b(\Omega) D^{\pi_2}(\Omega) d\Omega = \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} G_b(\vartheta, \varphi) \cos^2 \vartheta \sin \vartheta d\vartheta d\varphi = \\ &= 2\pi \int_0^{\pi} b_0 \cos^2 \vartheta \sin \vartheta d\vartheta, \end{aligned} \quad (3.14)$$

так как при интегрировании по  $\varphi$  равен нулю вклад членов Фурье - разложения (3.9) с  $n \neq 0$ . Подобным образом

$$I^{\sigma_4} = \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} G_b(\vartheta, \varphi) \sin^3 \vartheta \sin^2 \varphi d\vartheta d\varphi = \pi \int_0^{\pi} (b_0 - \text{Re} b_2) \sin^3 \vartheta d\vartheta \quad (3.15)$$

Значит, (3.14) и (3.15) содержат только  $b_0$ , определяемое по (3.12) и  $b_2$ , для нахождения которого нужно еще вычислить

$R_0$ . Можно показать, что  $|R_n|$  быстро убывает с ростом  $n$ . Полагая, что все  $R_n = 0$  начиная с некоторого  $n=p$ , можно по (3.13) найти  $R_{p-1}^{(p)}$  и т.д. вплоть до  $R_1^{(p)}$ , а затем получить  $R_0^{(p)}, b_0^{(p)}$  и  $b_2^{(p)}$ , см. П.4. Следовательно, точные значения  $b_0$  и  $b_2$  заменялись приближенными  $b_0^{(p)}$  и  $b_2^{(p)}$ . Погрешность приближения определялась отличием от нуля степени

$P(H)$  в точке  $H=0$ , так как можно доказать, что все другие значения  $I(H)$  и  $P(H)$  вычисляются с меньшей ошибкой. Для расчетов выбирались такие значения  $\rho$ , при которых  $|P(0)| < 10^{-4}$ .

Программы для расчета  $I^{\pi_2}$ ,  $I^{\sigma_y}$ ,  $P(H)$  приведены в П.4.

На рис. 3.4 приведены рассчитанные таким методом зависимости интенсивностей  $Q_1, Q_2$  - флуоресценции  $I^{\pi_2}$  и  $I^{\sigma_y}$ , а также степени поляризации  $P = (I^{\pi_2} - I^{\sigma_y}) / (I^{\pi_2} + I^{\sigma_y})$  от отношения  $\omega_a/\gamma$ , причем принято  $g_b/A \ll g_a/\gamma$ , в силу чего зависимости отражают проявление контура Ханле только основного  $a$ -уровня во флуоресценции с  $b$ -уровня. Здесь принято также соотношение  $A = 10^2 \gamma$ , что близко к реальным случаям молекул  $Na_2, K_2$ , см. гл. II. Значения степени поляризации  $P_{H \gg}$  при  $H \gg$  (пунктирные линии рис. 3.4б) совпадают с рис. 3.3а.

Другой предельный случай, когда проявляется только сигнал возбужденного уровня, изображен на рис. 3.5 и 3.6, где принято  $g_b/A \gg g_a/\gamma$ . Для очень слабого возбуждения  $x \rightarrow 0$ ,  $I^{\pi_2} = const$ , а  $H$ -зависимость  $I^{\sigma_y}$  и  $P$  получается путем точного решения (3.8)''', в котором принято  $\sigma_a(\nu, \varphi) - \sigma_a^0 = n_0 = const$ ,  $B\rho \ll A$ :

$$I^{\sigma_y} = \frac{B\rho}{A} \frac{4\pi}{15} n_0 \left( 1 + \frac{4\omega_b^2/A^2}{1 + 4\omega_b^2/A^2} \right) \quad (3.16)$$

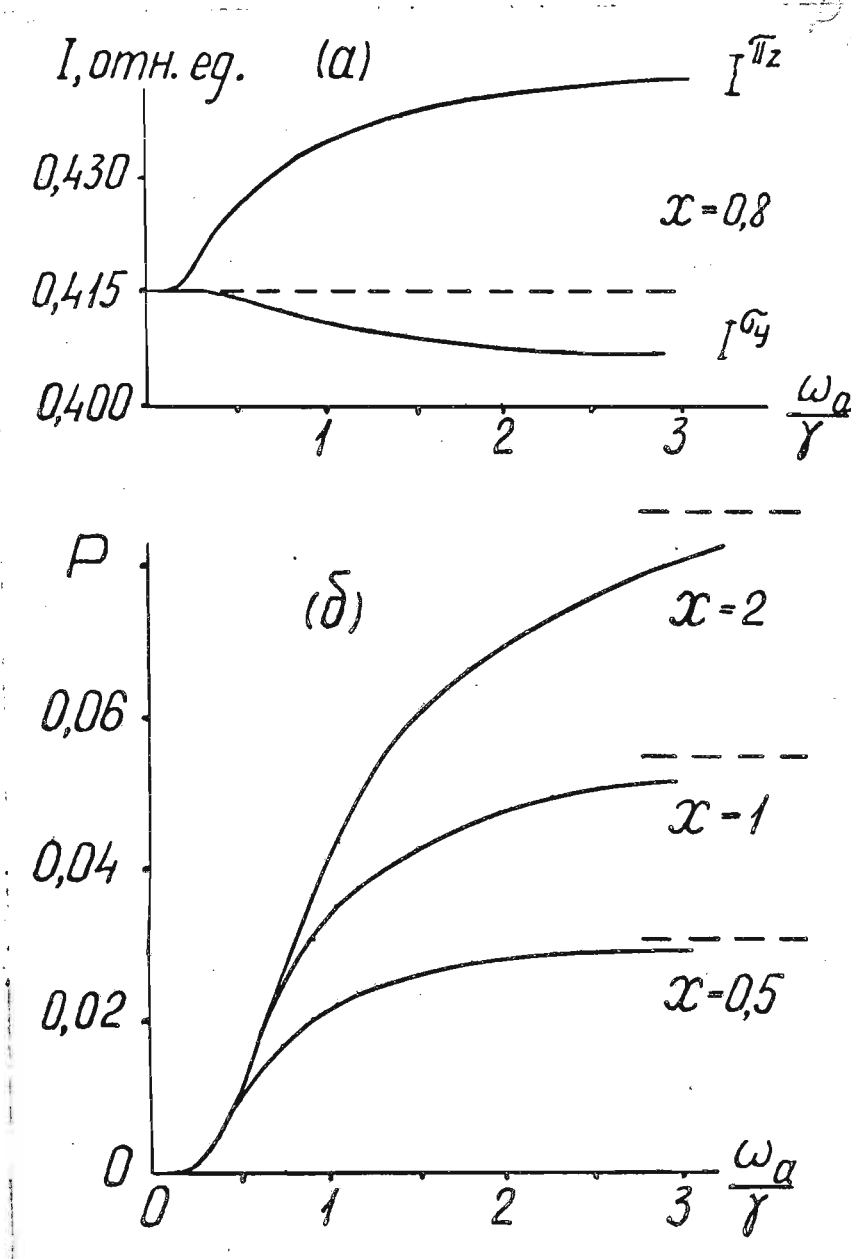
$$I^{\pi_2} = \frac{B\rho}{A} \frac{4\pi}{15} n_0 \quad (3.17)$$

$$P = \frac{-\frac{1}{3}(4\omega_b^2/A^2)}{2/3 + 4\omega_b^2/A^2} \quad (3.18)$$

Отметим, что при  $H \gg$  степень поляризации  $P_{H \gg} = -1/3$ .

Кривые рис. 3.7, 3.8, рассчитанные при соотношениях

$$g_b/A = \frac{1}{3} g_a/\gamma, \quad g_b/A = \frac{1}{10} g_a/\gamma, \quad A = 10^2 \gamma \quad \text{и различ-}$$



— Рис. 3.4. Зависимости интенсивностей  $I^{\pi z}$ ,  $I^{\sigma y}$  (а) и степени поляризации  $P$  (б) от  $\omega_a/\gamma$ , рассчитанные при условиях  $g_a/\gamma \gg g_b/A$  для различных параметров накачки  $x$ ; пунктиром показаны значения  $P_{H \gg}$ .

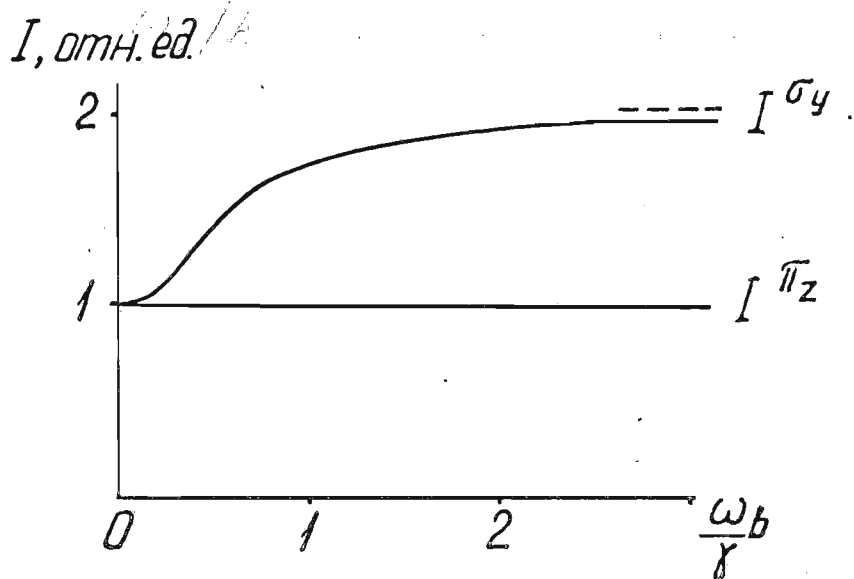


Рис. 3.5 Зависимости  $I_{\pi_z}$  и  $I_{\sigma_y}$  от  $\omega_b/A$ ,  
рассчитанные согласно (3.16) и (3.17)

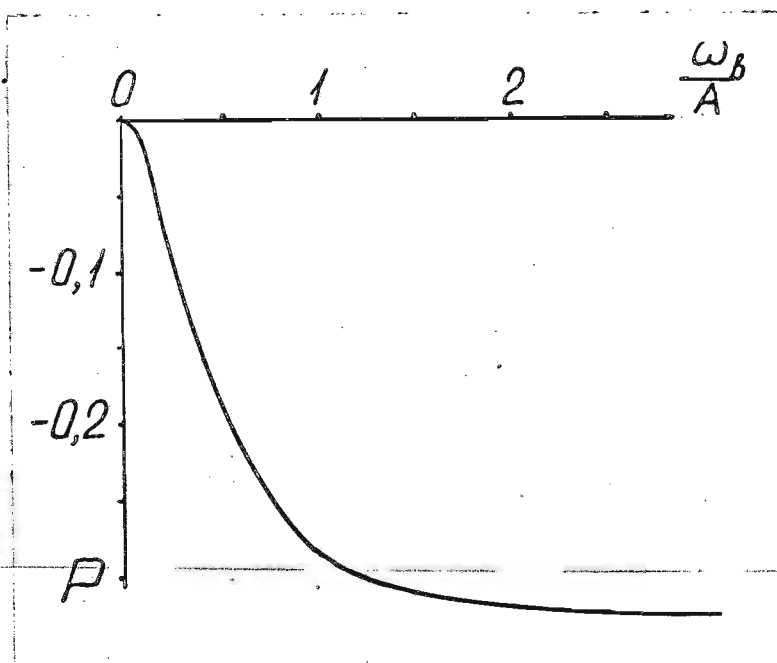


Рис. 3.6 Зависимость степени поляризации от отношения  
 $\omega_b/A$ , рассчитанная по (3.18)

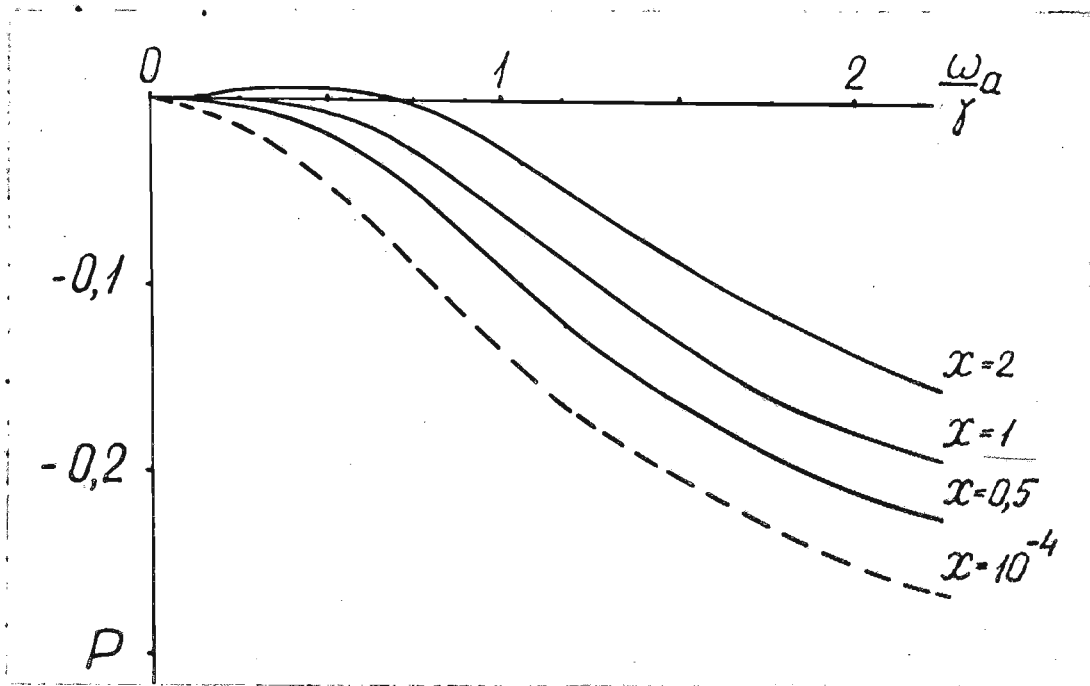


Рис. 3.7 Значения  $P(\omega_a/\gamma)$ , рассчитанные для случая  $q_b/A = \frac{1}{3}(q_a/\gamma)$  при различных параметрах накачки  $x$ .

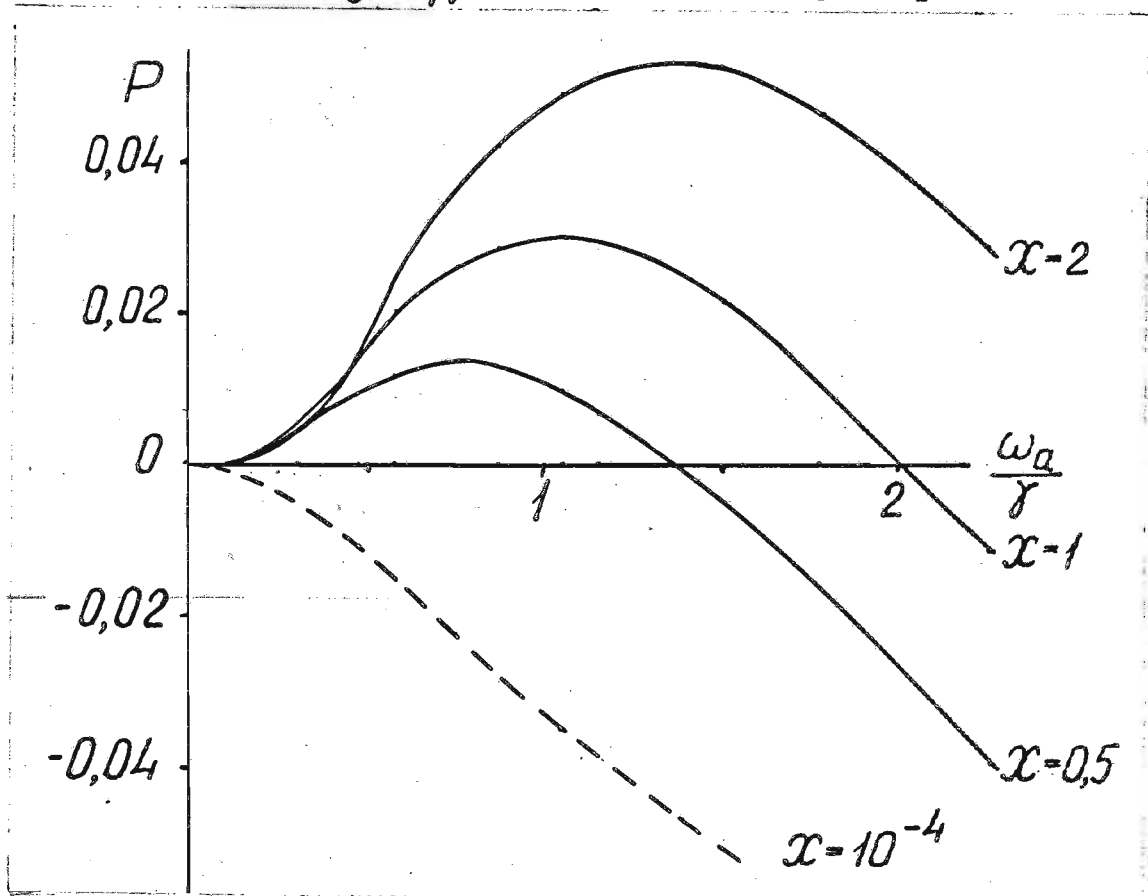


Рис. 3.8 Значения  $P(\omega_a/\gamma)$ , рассчитанные для случая  $q_b/A = \frac{1}{10}(q_a/\gamma)$ .

ных  $x$ , демонстрируют наложение сигнала Ханле уровня  $a$  на сигнал уровня  $b$  для случая, когда контур основного состояния уже, чем возбужденного. Условия рис. 3.7, 3.8 близки к реализованным в экспериментах на молекуле  $K_2$ : см. §3.4.

Рис. 3.9 демонстрирует случай переходов  $P$ -,  $R$ -типа, причем здесь сигнал основного уровня, напротив, шире, чем возбужденного, и, кроме того, константы  $\gamma = A$ . Похожий случай реализуется на молекуле  $J_2$  [25].

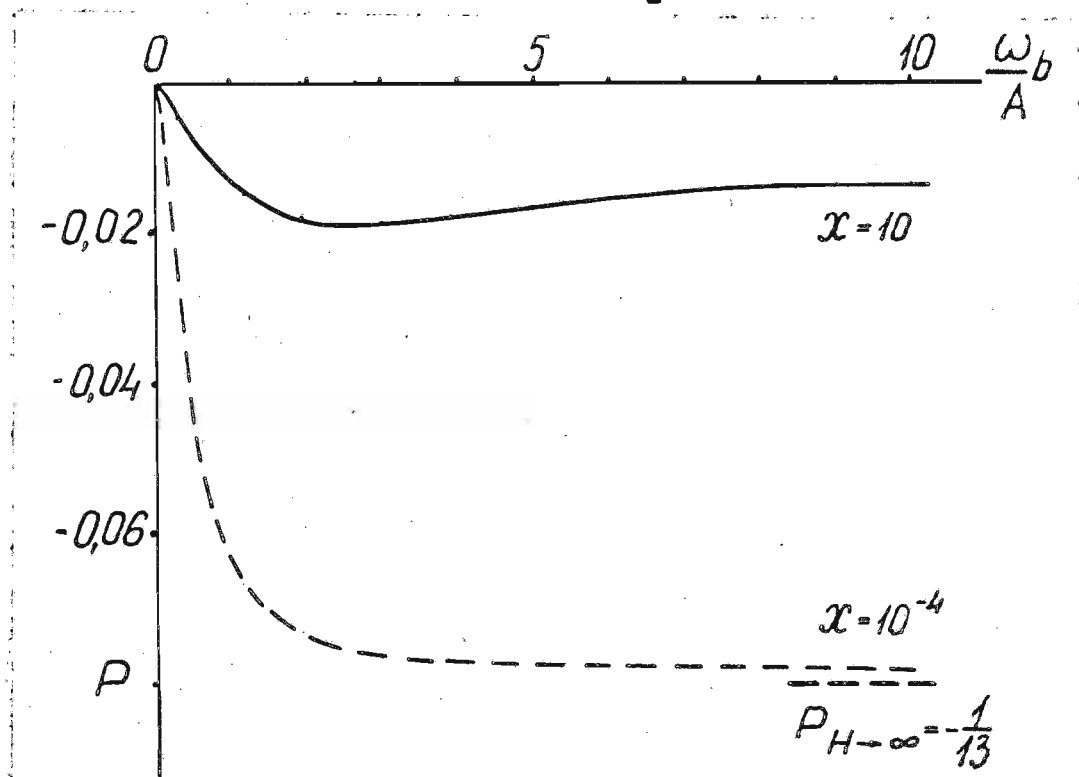


Рис. 3.9 Значения  $P(\omega_a/\gamma)$ , рассчитанные для случая  $g_a/\gamma = 5g_b/A$ ,  $\gamma = A$ ;  $P$ -,  $R$ -тип перехода.



б) связь с поляризационными моментами  $\rho_q^{(\alpha)}$

Для атомных систем описание пересечения уровней в частности эффекта Ханле без учета СТС, удобно проводить в формализме неприводимых тензорных операторов через поляризационные моменты  $\rho_q^{(\alpha)}$  /61,62/.

При когерентном возбуждении линейно-поляризованным светом, см. рис. 3.1, когда ось квантования  $OZ \parallel \vec{H}$ , а  $\vec{H} \perp \vec{E}$ , состояние описывается населенностью  $\rho_0^{(0)}$  и статистическим тензором выстраивания  $\rho_q^{(2)}$ , который, будучи приведенным к главным осям, имеет компоненты  $\rho_0^{(2)}$ ,  $\rho_{\pm 2}^{(2)}$ . Диагональная компонента продольного выстраивания  $\rho_0^{(2)}$  от магнитного поля не зависит, как и  $\rho_0^{(0)}$ . Недиагональные компоненты  $\rho_{\pm 2}^{(2)}$ , называемые поперечным выстраиванием, зависят от величины расщепления магнитных подуровней как  $\rho_{\pm 2}^{(2)} \approx 1/(\Gamma_2 \pm 2i\omega)$ , где  $\Gamma_2$  — константа релаксации выстраивания возбужденного уровня. В этих условиях говорят, что в возбужденном уровне создана когерентная суперпозиция состояний с  $|\Delta M'| = 2$  из-за пересечения  $M'$ -подуровней. Когерентность исчезает при  $\omega \gg \Gamma_2$ , что и приводит, в частности, к эффекту Ханле.

Перечисленные свойства статистического тензора имеют место лишь при слабом возбуждении светом широкого спектрального состава; в противном случае возникают т.н. нелинейные искажения сигналов пересечения уровней, см. обзоры и монографии /62, 65-67/, в частности, наложение сигналов Ханле уровней, связанных лазерным излучением. Расчеты проведены до конца для небольших значений углового момента  $j = 0, 1, 2$  и позволяют, в частности, интерпретировать нелинейные эффекты в экспериментах пересечения уровней на атомах  $Ne$  /115,66/,  $Hg$  и  $Cd$

/II6/, атомах  $Na$  в основном состоянии /II7/ и др.

Однако для случая двухатомных молекул, как уже неоднократно отмечалось выше, из-за больших  $J > 10$  не удастся провести последовательное описание нелинейных явлений, в частности, проявления эффекта Ханле основного уровня во флуоресценции с возбужденного состояния, в аппарате поляризационных моментов. Тем не менее, следуя подходу М.Дюкло /63,72/, см. §I.4, можно по крайней мере качественно интерпретировать полученные в § 3.2а результаты в терминах  $a\rho_q^{(\mathcal{L})}$ ,  $b\rho_q^{(\mathcal{L})}$ . Подобно (I.24), запишем систему (3.1) как

$$(\gamma^{(\mathcal{L})} + iq\omega_a) a\rho_q^{(\mathcal{L})} = \lambda \sqrt{4\pi} \delta_{\mathcal{L}0} \delta_{q0} - B\rho \sum_{\mathcal{L}'q'} C_{qq'}^{\mathcal{L}\mathcal{L}'} a\rho_{q'}^{(\mathcal{L}')} \quad (3.19)'$$

$$(A + iq\omega_b) b\rho_q^{(\mathcal{L})} = B\rho \sum_{\mathcal{L}'q'} C_{qq'}^{\mathcal{L}\mathcal{L}'} a\rho_{q'}^{(\mathcal{L}')} \quad (3.19)''$$

где  $C_{qq'}^{\mathcal{L}\mathcal{L}'}$  определяется из (I.25). Здесь пренебрегается вынужденными, обратными спонтанными переходами, а также влиянием столкновений на релаксацию возбужденного уровня, т.е. считаем

$$b\Gamma_{\mathcal{L}} = A_S = A \quad . \text{Сложив } (3.19)' \text{ и } (3.19)'', \text{ получим}$$

$$a\rho_q^{(\mathcal{L})} (\gamma^{(\mathcal{L})} + iq\omega_a) = \lambda \sqrt{4\pi} \delta_{\mathcal{L}0} \delta_{q0} + b\rho_q^{(\mathcal{L})} (A + iq\omega_b) \quad (3.20)$$

Подставив (3.20) в (3.19)'', имеем для  $\mathcal{L} = 2$ ,  $q = \pm 2$ :

$$b\rho_{\pm 2}^{(2)} (A \pm 2i\omega_b) = -B\rho \sum_{\mathcal{L}'q'} C_{\pm 2q'}^{2\mathcal{L}'} \frac{A + iq'\omega_b}{\gamma^{(\mathcal{L}')} + iq'\omega_a} b\rho_{q'}^{(\mathcal{L}')} \quad (3.21)$$

Входящие в (3.21) компоненты поперечного выстраивания  $b\rho_{\pm 2}^{(2)}$  ответственные за эффект Ханле, проявляются в интенсивности флуоресценции, см. (3.14), (3.15), через элементы матрицы плотности  $\sigma_b(\Omega) = \sum_{\mathcal{L}, q} \gamma_{\mathcal{L}}^q(\Omega) b\rho_q^{(\mathcal{L})}$ . Так как из (I.25)  $C_{\pm 2 \pm 2}^{22} \neq 0$  (в отличие, например, от  $C_{\pm 2 q}^{21} = 0$ ), то поперечное выстраивание уровня  $b$  связано с поперечным выстраиванием уровня  $a$  через  $(A \pm 2i\omega_b) / (\gamma^{(2)} \pm 2\omega_a)$ .

В частности, в условиях рис. 3.4, так как  $\omega_b/A \ll \omega_a/\gamma$ , зависимость  $b\rho_{\pm 2}^{(2)}$  от  $H$  связана с изменением знаменателя  $\gamma^{(2)} \pm 2i\omega_a$  и отражает эффект Ханле только основного уровня  $a$ . В условиях, при которых рассчитаны кривые рис. 3.7-3.9,  $b\rho_{\pm 2}^{(2)}$  зависит от  $H$  из-за пересечения уровней как основного, так и возбужденного состояний. Например, из рис. 3.8 хорошо видно, как на неискаженный при  $x = 10^{-4}$  контур Ханле уровня  $b$  при больших  $x = 0,5; 1,0; 2,0$  накладывается более узкий контур Ханле основного уровня  $a$ .

Кроме того, в уравнения (3.20) и (3.21) включается связь поперечного выстраивания с мультипольными моментами высших порядков, т.е. с  $\ell > 2$ . Как указано в /63/, наблюдаемой является только когерентность при  $|\Delta M''| = 4$ , т.к. из-за правил отбора дипольного перехода  $\Delta q = 0, \pm 2$  и  $\Delta \ell = 0, \pm 2$  зеemanовская когерентность с  $|\Delta M''| = 6, 8, \dots$  в двухуровневой схеме не может наблюдаться. Когерентность при  $|\Delta M''| = 4$  описывается тензором ранга  $\ell = 4$ , и  $a\rho_q^{(4)}$  называется "гексадекапольным" (т.к.  $4^2 = 16$ ) моментом, см. также /66, II6, II7/. Именно проявлением гексадекапольного момента уровня  $a$  М.Дюкло /63/ объясняет появление дополнительного сравнительно узкого пика при больших  $x$  в точке  $H = 0$ , см. рис. 3.10, доказывая это тем, что форма узкого пика повторяет контур "чистого" гексадекапольного момента  $a\rho_{\pm 4}^{(4)}$  /63/:

$$\begin{aligned} \operatorname{Re}[a\rho_{\pm 4}^{(4)}] &\sim \operatorname{Re}\left[\int_{(\Omega)} \rho_a(\Omega) (Y_4^4(\Omega))^* d\Omega\right] \sim \\ &\sim \int_0^\pi \operatorname{Re}[a_4(\vartheta)] \sin^5 \vartheta d\vartheta. \end{aligned} \quad (3.22)$$

Выражение (3.22) получается из (3.8) с учетом  $Y_4^4 \sim \sin^4 \vartheta e^{4i\varphi}$ .

Из приведенного рассмотрения в  $\ell, q$  - аппарате можно

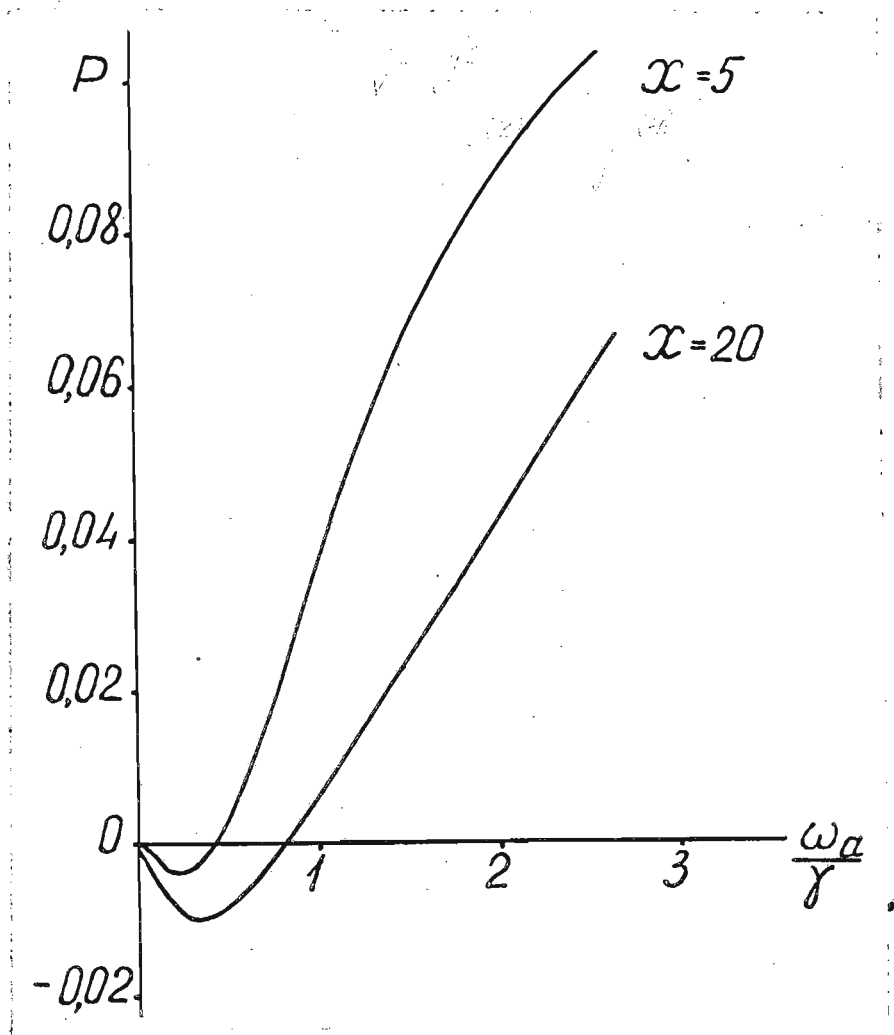


Рис. 3.10 Проявление дополнительной структуры сигнала при больших  $x$  (условия те же, что для рис. 3.4).

сделать следующие заключения. В уравнениях (3.1) принято, что все процессы релаксации в основном состоянии характеризуются одной константой  $\gamma$ . Это, в частности, означает  $\gamma^{(2)} = \gamma^{(4)}$ , что совсем не обязательно должно выполняться. Однако здесь имеются два следующих обстоятельства. Во-первых, если столкновительная релаксация когерентности идет в основном из-за ухода молекул с энергетического уровня  $(V'', J'')$ , см. главу II, не следует ожидать больших различий между  $\gamma^{(2)}$  и  $\gamma^{(4)}$ . Во-вторых, как показывают расчетные кривые рис. 3.4, 3.7, 3.8, для  $x < 2$

изменением формы сигнала, вызванным разрушением зеемановской когерентности  $|\Delta M''| = 4$ , вообще можно пренебречь; иными словами, во флуоресценции с уровня  $b$  связь  $b \rho_{\pm 2}^{(2)} \leftrightarrow a \rho_{\pm 2}^{(2)}$  индуцируется при гораздо меньших плотностях мощности лазерной накачки, чем связь с  $a \rho_{\pm 2}^{(4)}$ . В этих условиях можно принять, что входящая в систему (3.1) константа  $\gamma$  отражает константу релаксации  $\gamma^{(2)}$ .

в)  $g$  - ф а к т о р ы

Основной вклад в суммарный магнитный момент двухатомной молекулы (связь типа „ $a$ “ по Гунду) вносят /14,57,113/ :

(1) магнитный момент, связанный с орбитальным и спиновым моментом электронов; (2) магнитный момент, вызванный вращением молекулы; (3) магнитный момент, обусловленный спином ядер. Вклад (1) имеет порядок магнетона Бора  $\mu_0$ , вклад (2) и (3) - ядерного магнетона  $\mu_N$ .

$^1\Pi$ -состояния. Возбужденное  $b$ -состояние является парамагнитным  $B^1\Pi_u$ -состоянием, обладающим электронным орбитальным моментом, отсюда основной вклад в энергию взаимодействия с магнитным полем  $\Delta W$  вносит орбитальный магнитный момент электронов, т.е.  $\Delta W_e^{(1)} = -g_{J'} \mu_0 M' H$ , где  $M'$  - проекция углового момента  $J'$  возбужденного состояния,  $\mu_0$  - магнетон Бора,  $g_{J'}$  - фактор Ланде, равный

$$g_{J'} = 1/[J'(J'+1)]. \quad (3.23)$$

Вычисление  $g$ -фактора по (3.23) означает, что мы пренебрегаем влиянием вращательного момента и СТС, т.е. вкладом (2) и (3).

Авторами /77/ убедительно показано, что такое приближение хорошо выполняется для  $J' = 12$  состояния  $(B^1\Pi_u) Na_2$ . Действительно, влияние СТС, связанной со спином ядер  $I = \frac{3}{2}$  для

$Na^{23}$ , мало меняет  $g$  -фактор из-за  $J' \gg I$ ,  $J' = 12$ .

Но даже это небольшое изменение фактически не имеет места из-за очень короткого спонтанного времени жизни  $\tau = 6,41 \cdot 10^{-9}$  с, приводящего к  $\Gamma_{\text{спонт.}} \gg \Delta \text{ств.}$  Влиянием спина ядер тем более можно пренебречь для  $J' = 99$  ( $B^1\Pi_u$ )  $Na_2$ , а также для  $J' = 72$  ( $B^1\Pi_u$ )  $K_2$ .

$^1\Sigma$  -состояния. Основное  $a$  -состояние является  $^1\Sigma$  -состоянием, не обладающим орбитальным либо спиновым электронным моментом, отсюда магнитный момент определяется эффектами (2) и (3). Рассмотрим вначале случай отсутствия ядерных спинов. Тогда магнитный момент полностью определяется механизмом (2), так называемым "вращательным магнитным моментом". Такой момент возникает из-за вращения ядер вокруг центра масс. Однако из-за того, что вместе с ядрами вращаются электроны, появляется момент противоположного знака. Суммарный магнитный момент может быть как положительным ( $H_2$ ,  $D_2$  /57/, щелочные димеры /119/), так и отрицательным. Измерения в /57,119/ проведены методом молекулярных пучков и радиоспектроскопии. Расчеты, основанные на таких "механических" моделях с учетом эффекта "проскальзывания" электронного облака приведены в /57/; см. также /120/. Из-за вращательного магнитного момента  $\vec{\mu}_r$  уровень  $J'', M''$  приобретает в поле  $H$  энергию  $\Delta W^{(2)} = - \vec{\mu}_r \vec{H} = -g_r \mu_N M''$ , где  $g_r$  - вращательный фактор Ланде (в долях ядерного магнетона),  $\mu_N$  - ядерный магнетон, и уровень  $J''$  расщепляется на  $2M'' + 1$  эквидистантных уровня. Измеренные в /119/ значения  $g_r$  щелочных димеров имеют смысл усредненных по  $(v'', J'')$  в  $X^1\Sigma_g^+$  -состоянии. Авторы приводят  $g_r = 0.03892$  для  $Na_2$ , температура  $T = 715$  К, соответствующая наиболее вероятному вращательному уровню  $\langle J'' \rangle = 41$ ; для  $K_2$ :  $g_r = 0.02162$  при  $T = 645$  К,  $\langle J'' \rangle = 63$ . Следует ожидать /57,118/, что  $g_r$  слабо зависит

от  $J''$  и в этом смысле является молекулярной постоянной; влияние колебаний на вращение системы также ожидается небольшим для нескольких первых колебательных уровней  $V''$ .

Для  ${}^1\Sigma$ -состояний, учитывая, что  $g_I \cdot I_{H\mu_N} = 2.216 (Na^{23})$  и  $g_I \cdot I = 0,391 (K^{39}) / |2I|$ ,  $g_I$ -ядерный  $g$ -фактор,  $I = 3/2$ , не менее значительный вклад во взаимодействие с полем  $H$  вносят магнитные моменты ядер. Если взаимодействие

ядер между собой не разорвано полем, то энергия равна  $\Delta W^{(3)} =$

$- g_I M_T H$ , где  $M_T$  - проекция суммарного спина ядер  $T$ ,  $T = 0, 2$  для четных  $J''$  (ортосостояние) и  $T = 1, 3$  для нечетных  $J''$  (парасостояния). В противном случае

состояния  $I, M_I$  взаимодействуют с полем раздельно, и  $\Delta W^{(3)} =$

$$= - g_I (M_{I1} + M_{I2}) .$$

До сих пор мы не учитывали сверхтонкого взаимодействия моментов  $\vec{I}$  и  $\vec{J}$ . Такое взаимодействие может быть обусловлено электрическим квадрупольным

взаимодействием ядер с остальным полем молекулы в точке расположения ядра, что характеризуется константой  $eQq$ , где  $Q$  -

квадрупольный момент ядра,  $q$  - градиент поля вдоль межъядерной оси /57,118/. Кроме того,  $\vec{I}$  и  $\vec{J}$  связаны магнитным

дипольным взаимодействием; величина  $c_{IJ}$  определяется константой  $c_{IJ}$  (см. также /33,44/). Однако экспериментальные данные

по константам СТС в  $(v'' = 0, J'' = 28) X {}^1\Sigma_g^+ Na_2$ , а именно  $eQq/k =$

$-463.7$  кГц и  $c_{IJ} = 0.17$  кГц /33/ показывают, что уже для

$H \geq 10^2$  Гс магнитная энергия взаимодействия  $\vec{I}$  и  $\vec{J}$  с полем

примерно на порядок превышает энергию сверхтонкой связи между

$\vec{I}$  и  $\vec{J}$ ; соответствующие оценки сделаны по выражениям, приведенным в /119/.

Энергия взаимодействия в случае сильного поля равна

$$\Delta W^{(2,3)} = - g_I M_T H \mu_N - g_I M'' H \mu_N \quad (3.24)$$

или

$$\Delta W^{(2,3)} = -g_I (M_{I1} + M_{I2}) H \mu_N - g_r M'' H \mu_N, \quad (3.25)$$

если поле настолько сильное, что связь между ядерными спинами также разорвана. В обоих случаях в сильном поле эффект пересечения уровней, обусловленный поперечным полем  $\vec{H}$  оптическим выстраиванием уровня  $\nu'', J''$  основного  $\chi' \Sigma_g^+$ -состояния, обусловлен лишь когерентностью его магнитных подуровней  $|\Delta M''| = 2$  (правило отбора в сильном поле  $M' - M'' = 0, \pm 1$ , а  $\Delta M_I = 0$ , см., например, /122/). Следовательно, в наших условиях (см. ниже) эффект Ханле  $(\nu'', J'')$ -уровня  $(\chi' \Sigma_g^+) Na_2$  характеризуется вращательным  $g$ -фактором  $g_r$ , так как проявляется в полях  $H \gg 10^2$  Г. Можно ожидать, что сказанное относится и к  $\chi'(\Sigma_g^+) K_2$ , т.к. константы  $eqQ/\hbar = 158$  кГц /123/, а константа  $C_{IJ}$ , хотя и не измерена для  $K_2$ , но ожидается еще меньшей, чем для  $Na_2$ , как позволяют предполагать данные для  $Cs_2$  /44/.

### § 3.3 Экспериментальная установка

Исследования эффекта Ханле оптически выстроенного основного  $(\nu'', J'')$ -уровня  $Na_2, K_2$  производилось по измерению зависимости степени поляризации флуоресценции от соответствующим образом направленного (рис. 3.2) магнитного поля. Здесь проявляется удобство такой геометрии — наблюдение ведется в направлении, перпендикулярном полюсам. Экспериментальная установка в основном совпадала с описанной в § 1.5, рис. 1.17. Укажем лишь дополнительные элементы и изменения, связанные с наложением внешнего магнитного поля. Как показывают оценки, для  $Na_2$  и  $K_2$  печь с ячейкой флуоресценции необходимо поместить в зазор электромагнита, дающего поле более десяти килогаусс. Именно с этим связаны основные трудности постановки экспери-



мента: сам электромагнит, изменение конструкции печи-термоста-та, экранирование ФЭУ-79 от внешних магнитных полей, измерение небольших изменений степени поляризации слабых световых пото-ков.

Магнитное поле создавалось электромагнитом с полюсными наконечниками из АРМКО-железа, см.рис. 3.II.

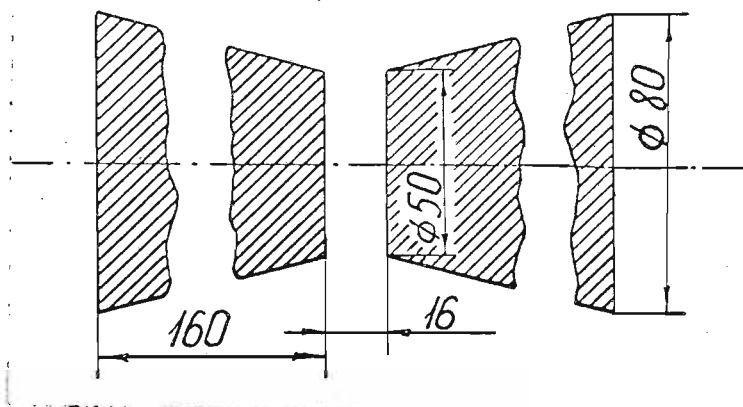


Рис. 3.II Полюсные наконечники электромагнита

При токе через обмотку 6А величина поля в центре зазора составляла 12,1 кГс. Неоднородность поля в пределах излучающего объема 2 мм x 5 мм была по данным измерений не хуже 1%. Измере-ние  $H$  производилось с помощью теслаамперметра Ф 4354/1 класса 0.5. Данный прибор был дополнительно калиброван с помощью эта-лонного электромагнита с неоднородностью поля  $\Delta H/H \leq 10^{-5}$  в 1 см<sup>3</sup>, напряженность которого в свою очередь определялась ЯМР-прибором Е II-2 с точностью  $10^{-1}$  Гс в пределе 0 - 5 кГс.

Ввиду сложности прямого измерения  $H$ , в процессе экспери-мента производилось измерение тока в обмотках, а напряженность определялась по гаусс-амперной характеристике электромагнита, тщательно определявшейся путем помещения зонда прибора Ф 4354/1

в место снятия излучения. Общая относительная погрешность измерения поля была около 3%.

Так как фотоумножители типа ФЭУ-79 с фокусирующей диафрагмой весьма чувствительны к магнитным полям, ФЭУ тщательно экранировался от действия паразитных магнитных полей с помощью трех коаксиальных цилиндрических экранов из мягкой стали общей толщиной в 25 мм.

Печь-термостат. Конструкция термостата, изображенная на рис. I.18, из-за больших размеров не могла быть использована в магнитных измерениях. Кроме того, как показали предварительные эксперименты, печь с нагревательной обмоткой сопротивления вообще плохо пригодна для работы в больших полях из-за изменения проводимости в магнитном поле. Поэтому в использованной при изучении эффекта Ханле конструкции печи-термостата, см. рис. 3.12, верхняя часть ячейки нагревалась потоком горячего воздуха. Воздух под давлением прогонялся через нагревательную систему I из шести кварцевых трубок 2 длиной 50 см с расположенными внутри нихромовыми нагревательными спиралями 3 (600вт) и создавал необходимую температуру верхней части ячейки 4. Печь помещалась между полюсами электромагнита 5. Температура контролировалась несколькими термопарами  $T_i$ . Нижняя печь 6 по конструкции аналогична изображенной на рис. I.18. Для питания нагревательных элементов также использовались терморегуляторы.

Измерения степени поляризации производились с использованием счета фотонов методом, описанным в § I.5в.

Детектирование эффекта Ханле по зависимости от магнитного поля степени поляризации  $P(H)$  оказалось значительно более точным, чем по зависимости интенсивностей  $I_{\pi_2, \sigma_2}(H)$  при учете конкретных экспериментальных возможностей. Так как эффект имеет малую (максимум несколько процентов) контрастность отно-

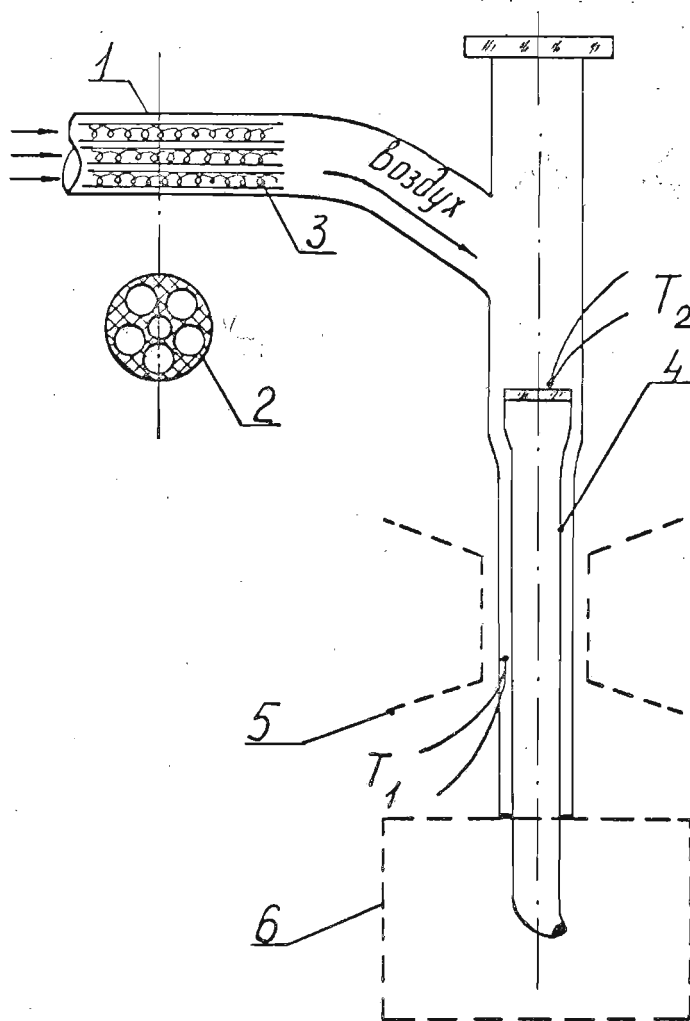


Рис. 3.12 Печь с воздушным нагревом ячейки

сительно всей интенсивности флуоресценции, в сигнал  $I_{\pi_2, \sigma_4}(H)$  большую ошибку вносит даже незначительный дрейф лазера или температуры паров. Описанная же в § 1.5в система измерения степени поляризации слабых световых потоков гораздо менее чувствительна к такому дрейфу. Удобной является также выбор "нетрадиционной" для эффекта Ханле геометрии, рис. 3.2, при которой во всех случаях  $P(0) = 0$ , что позволяет постоянно контролировать калибровку регистрационной системы, см. (1.26).

#### § 3.4 Стождествление сигнала Ханле основного электронного состояния $Na_2, K_2$ .

Экспериментально измерялась степень поляризации флуоресценции молекул  $K_2, Na_2$  в зависимости от магнитного поля. На-

правления возбуждающего лазерного луча, наблюдения, ориентации векторов  $\vec{E}$  и  $\vec{H}$  показаны на рис. 3.2.

а) эффект Ханле возбужденного  
( $v' = 8, J' = 72$ )  $B'\Pi_u$ -уровня  $K_2$

Ячейка с парами калия облучалась линией 632.8 нм He-Ne лазера. Измерения производились на выделенной монохроматором ДФС-12 линии  $Q_{16}$ , длина волны 688.4 нм, принадлежащей серии флуоресценции, возбужденной поглощением ( $v'' = 1, J'' = 72$ )  $\chi'\Sigma_g^+$  → ( $v' = 8, J' = 72$ )  $B'\Pi_u$ .

Точки рис. 3.13 получены при ослабленном возбуждении, когда плотность мощности не превышала  $0.05 \text{ Вт}\cdot\text{см}^{-2}$  (излучение лазера ЛГ-36А ослаблено до величины менее 1 мВт, диаметр луча 1.6 мм, модовый режим  $TEM_{000}$ ). В этих условиях зависимость  $P(H)$  есть часть контура Ханле возбужденного ( $8, 72$ )  $B'\Pi_u$ -уровня  $K_2$ , неискаженного мощностью лазерного поля — случай, описываемый выражением (3.18). На рисунке приведена лишь половина симметричного по  $\pm H$  контура. К сожалению, недостаточная величина магнитного поля не позволила получить весь контур Ханле, однако проведенная методом наименьших квадратов вариацией одного параметра в формуле (3.18) теоретическая кривая (сплошная кривая рис. 3.13) позволила определить величину  $g_b/A$ . Из усредненных по серии экспериментов значений, принимая величину  $g_b$ -фактора по (3.23) равной  $g_{J'} = 1/(J' + 1) = 1,903 \cdot 10^{-4}$ , определено время  $\tau = A^{-1} = (11,6 \pm 0,7) \cdot 10^{-9} \text{ с}$ . Измерения производились при температуре  $T = 523 \text{ К}$ , соответствующей концентрации атомов калия  $N_K = 7,3 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$  и молекул  $N_{K_2} = 1,2 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$ . При таких концентрациях, соответствующих давлению 0.05 тор, уширение контура столкновениями практически не проявляется из-за короткого времени спонтанного распада: столкновения с

сечением  $10^{-14}$  см<sup>2</sup> уменьшили бы  $\tau$  на 0,6%. Об этом свидетельствуют также экспериментальные данные о концентрационной зависимости времени жизни  $(V'\Pi_u)K_2$ , полученные в [124,125] методом сдвига фаз и аналогичные данные по  $(V'\Pi_u)Na_2$  [126], см. ПИ, рис. П.1. Следовательно, можно принять, что измеренное в настоящей работе по эффекту Ханле время жизни  $(8,72)V'\Pi_u$  молекулы  $K_2$  соответствует времени спонтанного распада.

Следует обсудить правомерность определения  $g_{J'}$ -фактора по (3.23). Для  $J'=72$ ,  $\tau \sim 10^{-8}$  с влиянием спина ядер можно пренебречь, учитывая сказанное в § 3.2в. Однако  $g_{J'} = 1/J'(J'+1)$  имеет для  $J'=72$  очень малую величину  $1,9 \cdot 10^{-4}$ , которая только в  $\sim 20$  раз превышает величину вращательного фактора, если принять, что последний для возбужденного  $V$ -состояния примерно такой же, как и для основного  $X$ -состояния, что может внести в эффективный фактор Ланде ошибку около 5%.

Учитывая это, принимаем, что методом пересечения уровней определено время спонтанного распада уровня  $(V'=8, J'=72)V'\Pi_u$ -состояния  $K_2$ , равное  $\tau_S = (11,6 \pm 1,2) \cdot 10^{-9}$  с.

В литературе [124,125] имеются данные об измерении методом сдвига фаз естественного времени жизни  $V'\Pi_u$ -состояния  $K_2$ , усредненного по нескольким колебательно-вращательным подуровням  $(V'=6, J'=17)$ ,  $(V'=7, J'=81)$  и  $(V'=8, J'=72)$ . В.Демтредер с сотрудниками [125] приводят  $\tau_S = (9,7 \pm 0,3) \cdot 10^{-9}$  с, а у В.Танго и Р.Зеира  $\tau_S = (12,4 \pm 0,3) \cdot 10^{-9}$  с [124]. Кроме того, авторы [124] произвели расчет, дающий для  $V'=8$  результат  $\tau_S^{th.} = 12,18 \cdot 10^{-9}$  с. Полученное в настоящей работе значение  $(11,6 \pm 1,2) \cdot 10^{-9}$  с вполне согласуется с экспериментальными и расчетными данными [124].

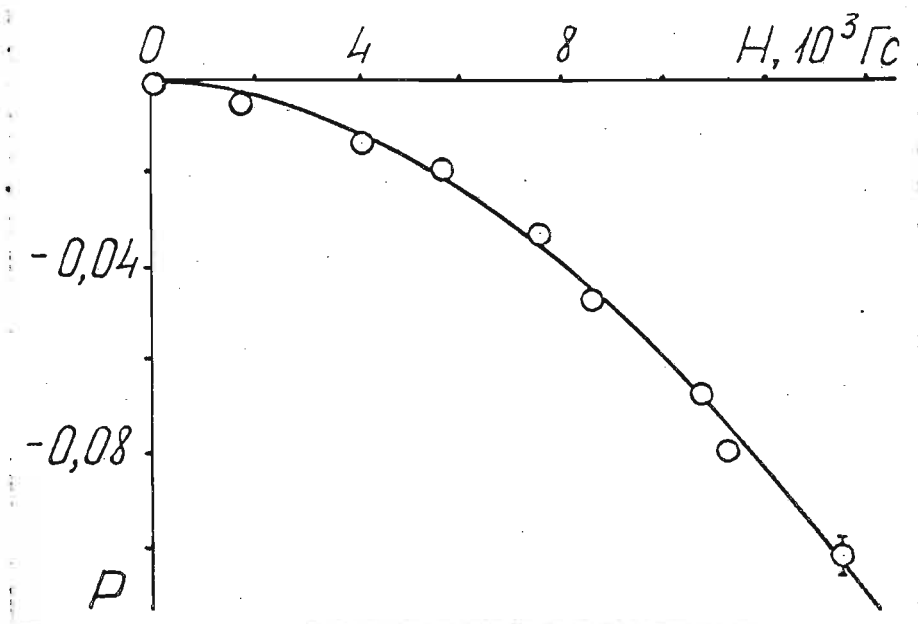


Рис. 3.13 Контур Ханле возбужденного уровня  $(8,72) K_2 (V^1P_u)$ ; геометрия эксперимента соответствует изображенной на рис. 3.2.

б) суперпозиционный контур  $K_2$ .

Точки рис. 3.14 получены при плотности мощности возбуждения  $\rho \sim 1 \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$  (мощность ЛГ - 36А над входным окошком ячейки  $\sim 20 \text{ мВт}$ , диаметр луча  $\approx 2 \text{ мм}$ ). Регистрировалась флуоресценция на той же линии  $Q_{I6}$ , переход  $(8,72) \rightarrow (I6,72)$ , температура калия 465 К, соответствующая концентрации атомов ка-

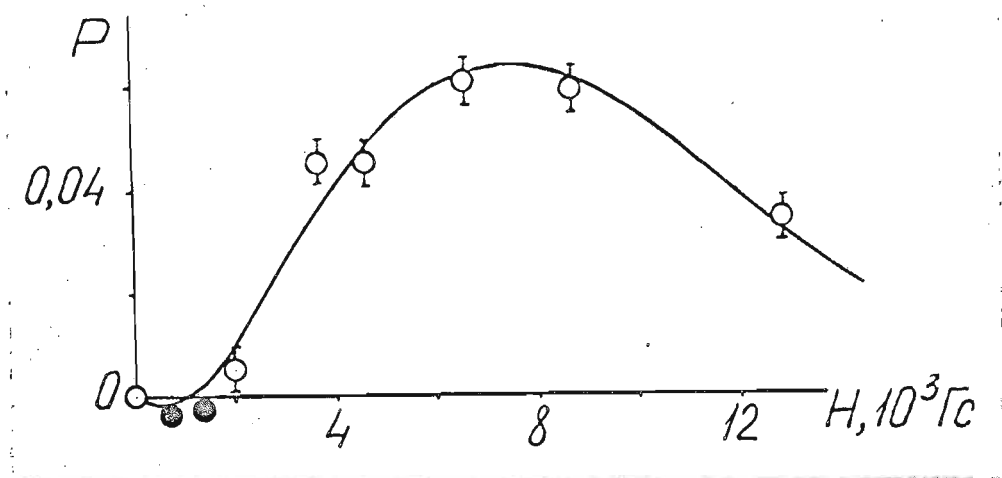


Рис. 3.14 Суперпозиционный сигнал Ханле основного  $(1,72) \chi' \Sigma_g^+$  и возбужденного  $(8,72) B' \Pi_u$  уровней  $K_2$ .

для  $N_K = 9,1 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$ , молекул  $N_{K_2} = 6,5 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-3}$ . В этих условиях основной уровень  $(V''=1, J''=72)$  заметно оптически выстроен, см. § 2.4, рис. 2.5, и параметр оптической накачки, определенный из измерения степени поляризации при  $\vec{E} \parallel OZ, H=0$ , равен  $\mathcal{X} = 3,0$ .

Приведенные на рис. 3.14 измеренные значения  $P(H)$  ясно демонстрируют наличие двух конкурирующих эффектов - сигнала Ханле основного  $(V''=1, J''=72) \chi' \Sigma_g^+$  и возбужденного  $(V'=8, J'=72) B' \Pi_u$ -уровней, связанных лазерным  $\chi \rightarrow B$  переходом.

Растущие с ростом поля положительные значения  $P(H)$  есть проявление сигнала основного состояния, а заметный спад при  $H \geq 6$  кГс — сигнала возбужденного состояния. Сплошная кривая соответствует расчету по изложенному в § 3.2 методу решения системы (3.8) при значениях  $A = (1/11.6) \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$ ,  $g_b = g_{j'} = 1/j'(j'+1) = 1.9 \cdot 10^{-4}$ ,  $g_a = g_r = 0.0216$ .

Методом наименьших квадратов варьировались два параметра  $B\rho$  и  $\gamma$ , что позволило определить значение скорости релаксации  $\gamma$  в основном состоянии, равное  $0,5 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$ . Здесь экспериментально реализуется случай, подобный рассчитанному в предыдущем параграфе, рис. 3.8, так как  $g_b/A = 2,2 \cdot 10^{-12} \text{ с}$ , а  $g_a/\gamma = 2,3 \cdot 10^{-11} \text{ с}$ , т.е.  $g_b/A \approx 0.1(g_a/\gamma)$ .

Специальные измерения с меньшей статистической погрешностью (за счет увеличения времени накопления одноэлектронных импульсов до 1 часа при каждом значении  $H$ ; скорость счета 200 имп.с<sup>-1</sup>), проведенные в подобных рис. 3.14 условиях эксперимента в области  $H = 0 \pm 2$  кГс подтвердили наличие отрицательных значений степени поляризации в этой области, см. рис. 3.15, выходящих за пределы случайной ошибки. Отметим, что величина ошибки определена из распределения случайной величины  $P_i(H)$  и соответствует доверительному интервалу  $2\sigma$ ; построение гистограммы распределения подтвердило удовлетворительное выполнение закона нормального распределения случайных погрешностей. Проведенная при параметрах, определенных из сигнала на рис. 3.14 ( $\mathcal{X} = 3$ ,  $\gamma = 0.5 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$ ) теоретическая кривая (пунктир, рис. 3.15) также имеет подобную структуру, хотя и с меньшими амплитудами отрицательных значений. Появление такого дополнительного узкого максимума в  $H = 0$  (более выраженного при  $\mathcal{X} \geq 5$ , см. рис. 3.10), как уже обсуждалось в § 3.2, следуя /63/ объясняется резонансом гексадекапольного момента основного уровня.



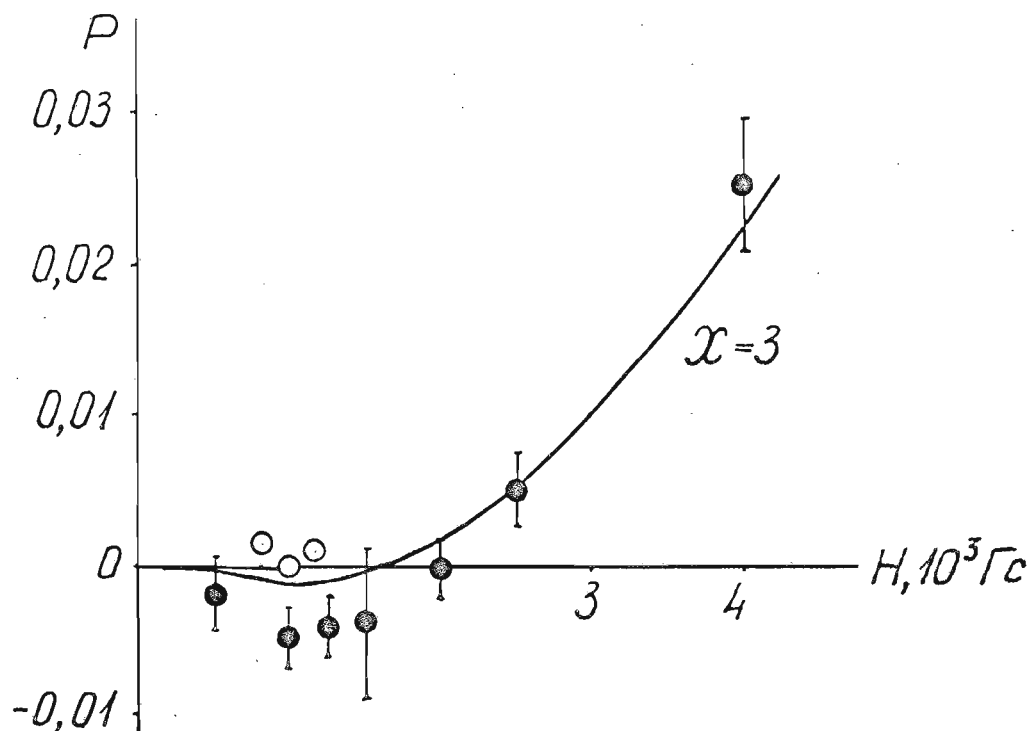


Рис. 3.15 Зависимость степени поляризации от магнитного поля, демонстрирующая наличие отрицательных значений  $P$  в области  $H \leq 2$  кГ; мощность лазера  $\rho \sim 1$  Вт·см<sup>-2</sup>.

● - при  $T = 465$  К, ○ - при  $T = 540$  К.

Контрольные измерения были проведены при  $T = 540$  К,  $N_K = 1,7 \cdot 10^{15}$  см<sup>-3</sup>, т.е. в условиях, когда релаксационные столкновения настолько уменьшают  $X$ , (см., например, рис. 2.5), что гексадекапольный момент не должен проявляться (см. рис. 3.4, 3.10). И действительно, как видно из рис. 3.15, отрицательные значения степени исчезли. Этот факт практически исключает возможность обусловленности структуры какими-либо неучтенными систематическими ошибками.

На наш взгляд, хотя вопрос несомненно требует дальнейшего количественного подтверждения, наблюдаемая структура зависимости  $P(H)$  в области малых полей при максимальном достигнутом в наших экспериментах на  $K_2$  параметре оптической накачки

выходит за пределы экспериментальных погрешностей и качественно подтверждает наличие предсказанного в теоретической работе /63/ эффекта разрушения возникающей в  $(V''=1, J''=72) \chi' \Sigma_g^+$ -состоянии когерентности  $|\Delta M''| = 4$  магнитным полем.

Итак, зарегистрированные зависимости  $P(H)$  типа рис. 3.14, 3.15, см. также далее 3.17, 3.19, 3.20, демонстрируют наложение сигнала Ханле уровня  $(V''=1, J''=72) \chi' \Sigma_g^+$  основного состояния  $K_2$  на контур Ханле возбужденного  $(V'=8, J'=72) K_2$  в  $V' \Pi_u$ -состоянии и образование суперпозиционного контура Ханле. Сравнение с расчетными кривыми и характер изменения контура при изменении плотности мощности возбуждения  $\rho$  позволяют отождествить зарегистрированную форму сигнала с проявлением при достаточно больших  $\rho$  эффекта Ханле оптически выстроенного  $(V'', J'')$ -уровня основного электронного состояния  $\chi' \Sigma_g^+$ .

в) сигнал Ханле  $(V''=2, J''=99) \chi' \Sigma_g^+$  уровня  $Na_2$  основного электронного состояния.

Измерения проведены также на молекулах  $Na_2$ . Одну из типичных серий измерений иллюстрируют экспериментальные точки на рис. 3.16. Ячейка с парами натрия возбуждалась линией 488.0 нм  $Ar^+$ -лазера. Для регистрации эффекта Ханле основного  $(V'', J'') \chi' \Sigma_g^+$ -состояния  $Na_2$  выбран переход  $(V''=2, J''=99) \chi' \Sigma_g^+ - (V'=7, J'=99) V' \Pi_u$ . Выбор уровня со столь большим вращательным квантовым числом вызван тем, что  $g_{J'}$ -фактор возбужденного уровня уменьшается с ростом  $J'$  как  $1/(J')^2$ , вследствие чего уширяется соответствующий контур Ханле возбужденного состояния и становится малозаметным в рабочем диапазоне  $H$ , см. расчетную кривую рис. 3.16а. Это подтверждают и контрольные точки 3.16а, полученные при ослабленном до  $\rho \leq 0,3 \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$  лазерном луче. Во флуоресценции регистрировалась линия  $Q_9$ , переход  $(7, 99) \longrightarrow$

(9,99), длина волны 512,6 нм.

Экспериментальные значения  $P(H)$ , приведенные на рис. 3.166 получены при  $\rho \sim 10 \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$ , диаметре луча  $\approx 2 \text{ мм}$ , температура 575 К, концентрация атомов натрия  $3.2 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$  /93/. Сплошная кривая 3.166 рассчитана при  $A = (1/6.41) \cdot 10^9 \text{ с}^{-1}$  /77/,  $g_a = g_r = 0.0389$  /119/ и при полученных путем минимизации  $\gamma = 1.1 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$ ,  $x = 0.42$ .

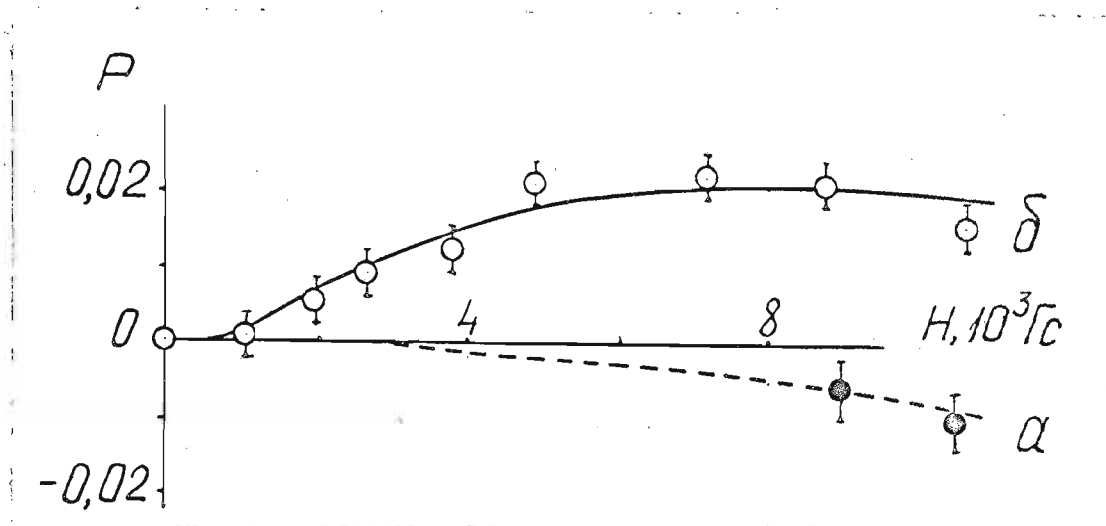


Рис. 3.16 Зависимость степени поляризации  $P$  флуоресценции  $\text{Na}_2$  от магнитного поля  $H$ . Возбуждение линией 488.0 нм перехода  $(2,99) X' \Sigma_g^+$   $(7,99) V' \Pi_u$   
 (а)  $\rho \sim 0.3 \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$ ; (б)  $\rho \sim 10 \text{ Вт} \cdot \text{см}^{-2}$

Данный случай соответствует соотношению параметров, определяющих характерную ширину контуров Ханле основного и возбужденного состояний, равному  $g_b/A \approx \frac{1}{30} (g_a/\gamma)$ .

Результаты измерений на молекулах  $\text{Na}_2$  убедительно демонстрируют проявление сигнала пересечения магнитных подуровней оптически выстроенного уровня ( $V''=2, J''=99$ ) основного электронного  $X' \Sigma_g^+$  -состояния. Сигнал от возбужденного состояния, по ширине значительно превосходящий сигнал основного, приводит лишь к незначительному уменьшению  $P$  при больших  $H$ , см.рис.3.16

Проявление структуры при малых  $H$ , подобной рис. 3.15, не было зафиксировано. Это хорошо согласуется с тем, что расчеты не предсказывают проявления гексадекапольного резонанса основного уровня при небольших экспериментально достижимых в наших условиях значениях параметра накачки  $X \lesssim 1$ .

Как отмечено в § 3.16, авторы работ /II3, II4/ наблюдали возрастание интенсивности флуоресценции  $J_2$  в магнитных полях порядка нескольких килогаусс при возбуждении интенсивными лазерами на  $Ar^+$  и  $Kr^+$ , в том числе при  $\vec{H} \parallel \vec{E}$  ( $\pi$ -возбуждении). Проведение подобных измерений на молекулах  $J_2$ ,  $T = 263$  К /25/, используя возбуждение  $(V''=0, J''=13, 15) \chi^1 \Sigma_g^+ \rightarrow (V'=43, J'=14, 16) B^3 \Pi_{0u}^+$  линией  $Ar^+$ -лазера 514.5 нм ( $\rho \sim 5$  Вт·см<sup>-2</sup>), показали, что при направлении поляризации возбуждения  $\vec{E}$  вдоль оси  $OZ$ , рис. 3.2 (т.е. так, что  $\vec{E} \parallel \vec{H}$ ), не только  $I^{\pi_z}$  и  $I^{\sigma_y}$ , но и степень поляризации  $(I^{\pi_z} - I^{\sigma_y}) / (I^{\pi_z} + I^{\sigma_y})$  также заметно (до 20% по контрасту) зависит от внешнего поля с полушириной контура порядка 3 кГс. Явления интерпретируются как проявление нелинейных эффектов типа сканирования беннетовских провалов /II4/, вследствие невыполнения приближения возбуждения широкой линией для  $J_2$ , см. § 3.16.

В то же время проведенные тщательные измерения на  $K_2$  и  $Na_2$  при  $\vec{H} \parallel \vec{E} \parallel OZ$  показали отсутствие зависимости степени поляризации  $P$  от магнитного поля во всем диапазоне полей  $H = 0 \div 13$  кГс (с ошибкой не более  $\pm 0.005$ ) независимо от плотности мощности возбуждения и температуры паров. Это подтверждает справедливость сделанных ранее оценок, предсказывающих выполнение приближения возбуждения "квазиширокой" линией в наших случаях оптической накачки  $(V'', J'')$ -уровней  $Na_2, K_2$ .

В заключение упомянем простое, физически наглядное объяснение разного знака сигналов Ханле основного и возбужденного

состояния, используя классическую модель осциллирующих диполей, направленных для случая  $Q$ -переходов вдоль момента  $\vec{J}$  /18/. Диполи, соответствующие возбужденному состоянию, выстроены преимущественно по направлению вектора  $\vec{E}$  линейно-поляризованного возбуждающего луча, в то время как диполи основного состояния выстроены селективным по  $\nu, \varphi$  поглощением преимущественно перпендикулярно  $\vec{E}$ , см. § I.4. Следовательно, прецессия диполей вокруг внешнего поля  $\vec{H}$  должна привести к появлению степени поляризации разного знака. Конкретный вид суперпозиционного сигнала зависит от соотношения ларморовских частот прецессии  $\omega_a$  и  $\omega_b$  и степени выстраивания диполей основного и возбужденного состояний. При желании наблюдать эффект Ханле возбужденного уровня луч ослабляют и выбирают уровни с по возможности меньшими  $J'$ , как, например,  $J'=12$  в /77/ для  $Na_2$ , что дает возможность работать в меньших магнитных полях. Если же наоборот влияние эффекта возбужденного уровня желательно устранить, целесообразно выбрать уровень с по возможности большим  $J''$  (например,  $J''=99$  в данной работе для  $Na_2$ ).

§ 3.5 Определение констант и сечений релаксации по сигналу Ханле основного состояния; обсуждение результатов.

Обработка зарегистрированных сигналов пересечения магнитных подуровней в нулевом поле в условиях оптического выстраивания основного состояния позволила определить константу релаксации  $\gamma$  для уровней ( $\nu''=2, J''=99$ )  $Na_2$  и ( $\nu''=1, J''=72$ )  $K_2$  в основном электронном  $X^1\Sigma_g^+$ -состоянии. По зависимости  $\gamma$  от атомных концентраций натрия и калия определены константы ско-

рости и эффективные сечения релаксации при столкновениях  $Na_2^+ + Na$ ,  $K_2 + K$ . Проведено обсуждение полученных экспериментальных результатов.

Молекулы  $Na_2$ . Сигналы пересечения уровней основного  $(2,99) X' \Sigma_g^+$ -состояния при двух различных температурах приведены на рис. 3.17а. Здесь заметно проявляется уширение контура из-за столкновений с атомами. Вместе с тем с ростом  $N_{Na}$  уменьшается параметр накачки  $\mathcal{X}$ , что приводит к уменьшению амплитуды сигнала. Измерения  $P(H)$  подобные приведенным на рис. 3.17б при постоянной температуре, но отличающихся мощностях лазерного излучения накачки, не показали изменений  $\gamma$  более чем на 10-15%, т.е. в пределах ошибок не обнаружено зависимости  $\gamma$  от  $\rho$ .

Значения  $\gamma$ , полученные из серии измерений в диапазоне температур от 538 К до 589 К приведены на рис. 3.18 в зависимости от  $\sqrt{\frac{T}{T_0}} N_{Na}$ , где  $T_0 = 538$  К. Точки рис. 3.18 хорошо ложатся на прямую, соответствующую константе скорости  $k = 1,7 \cdot 10^{-9} \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}$ . Получено усредненное по нескольким сериям измерений значение эффективного сечения релаксации в соударениях  $Na_2 + Na$ , равное  $\sigma(Na_2 + Na) = (2,0 \pm 0,4) \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ .

Молекулы  $K_2$ . Суперпозиционные контуры Ханле основного и возбужденного уровней  $K_2$  для трех различных температур приведены на рис. 3.19. Обработка данных также показывает увеличение константы релаксации  $\gamma$  с ростом концентрации атомов калия  $N_K$ . Пунктирная кривая соответствует случаю рис. 3.13.

Результаты, приведенные на рис. 3.20, демонстрируют, что  $\gamma$  в случае  $(1,72) K_2(X' \Sigma_g^+)$  также сохраняет неизменные в пределах ошибок значения при различных плотностях мощности возбуждения  $\rho$ .

Типичная зависимость  $\gamma$  от  $\sqrt{\frac{T}{T_0}} N_K$  приведена на

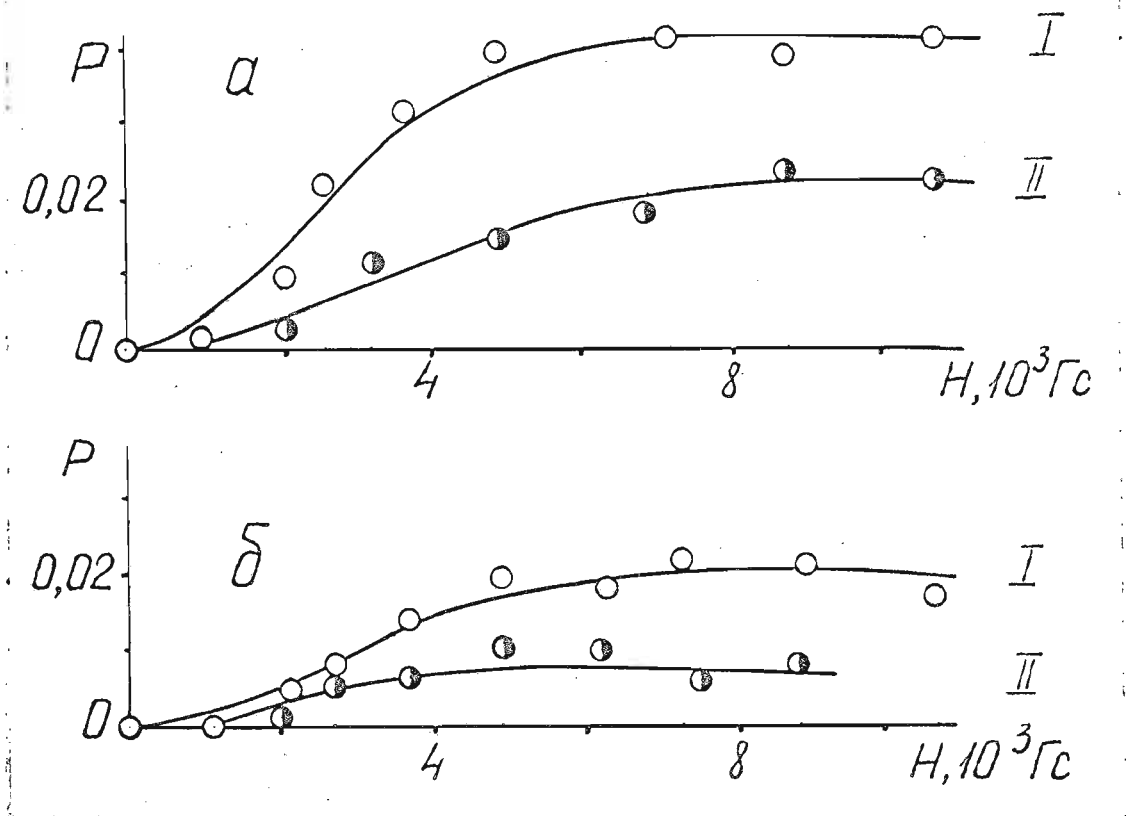


Рис. 3.17 Эффект Ханле (2,99)  $\text{Na}_2$  ( $\chi^1\Sigma_g^+$ )

(а) при различных температурах:

$$\text{I} - 538 \text{ К}, N_{\text{Na}} = 0,81 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}, \gamma = 0,8 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1},$$

$$\text{II} - 589 \text{ К}, N_{\text{Na}} = 5,2 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}, \gamma = 1,6 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}.$$

(б) при различных плотностях мощности

возбуждения  $\rho_{\text{I}} = 2\rho_{\text{II}}$  :

$$\text{I} - 575 \text{ К}, x^{-1} = 2,4, \gamma = 1,2 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1},$$

$$\text{II} - 575 \text{ К}, x^{-1} = 4,7, \gamma = 1,1 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$$

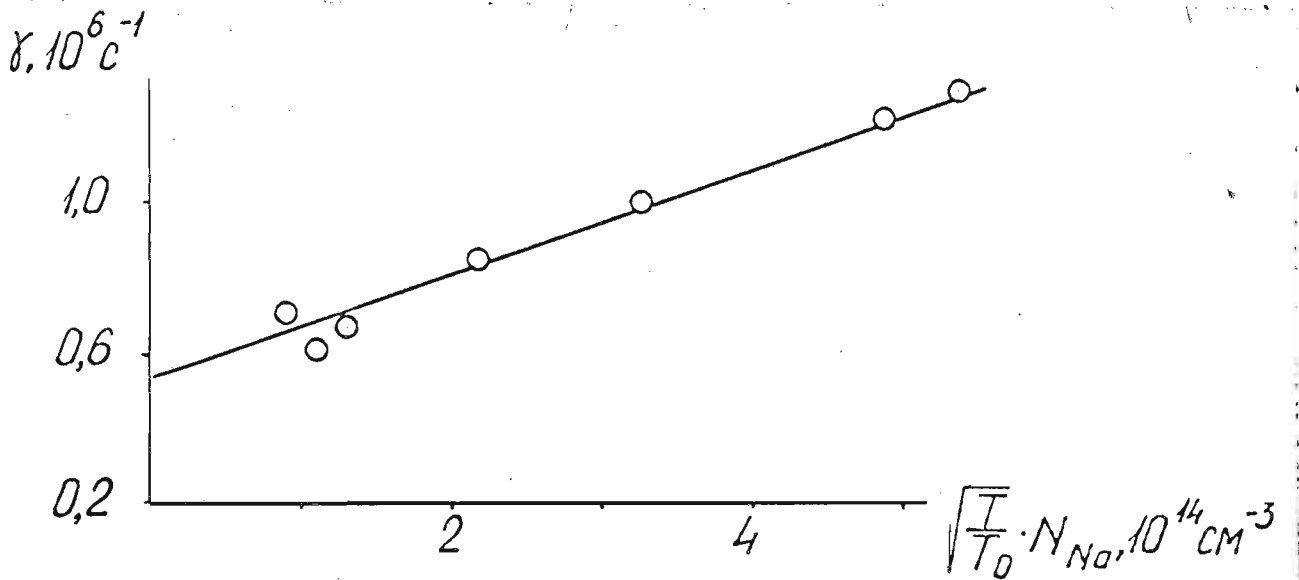


Рис. 3.18 Зависимость константы релаксации  $\gamma$  уровня (2,99)  $Na_2(\chi'\Sigma_g^+)$  от концентрации  $N_{Na}$  атомов натрия.

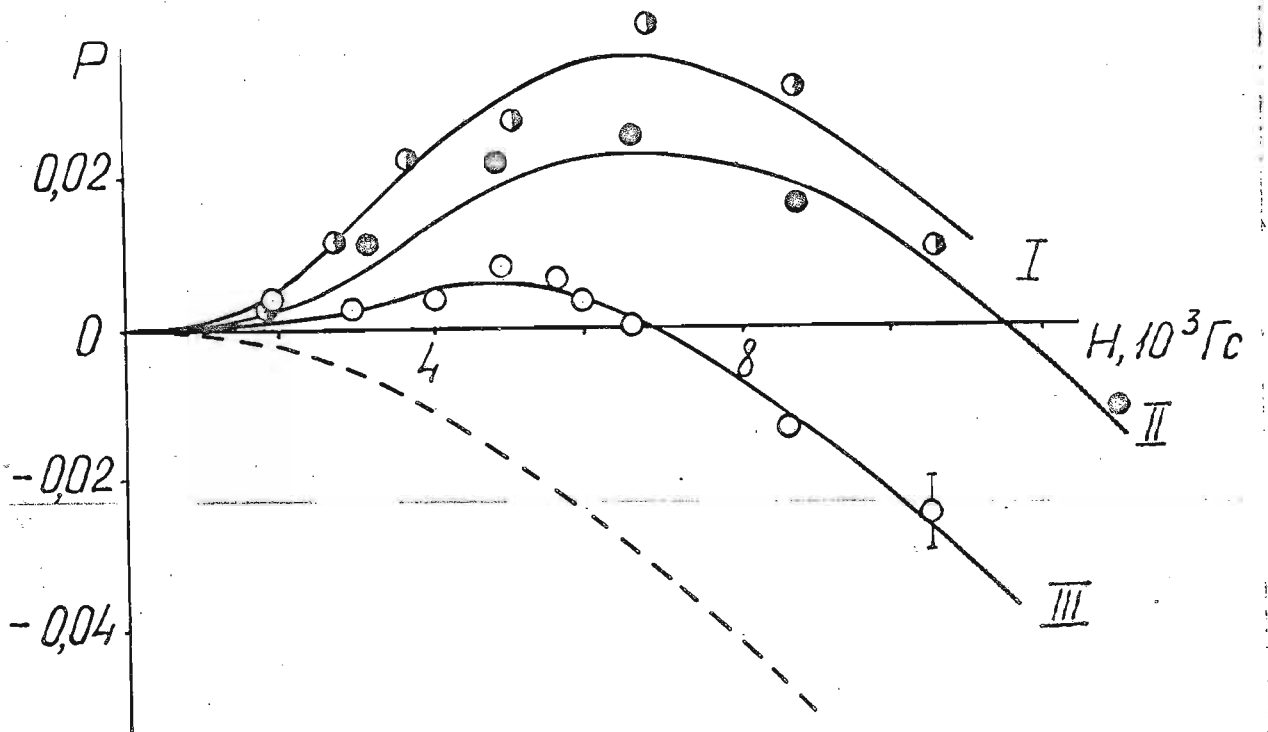


Рис. 3.19 Примеры графиков для определения константы релаксации (I,72)  $K_2(\chi'\Sigma_g^+)$  при различных  $T$ .

- I - 467 К,  $\gamma = 0.7 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$   
 II - 483 К,  $\gamma = 0.9 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$   
 III - 499 К,  $\gamma = 1.2 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$ .



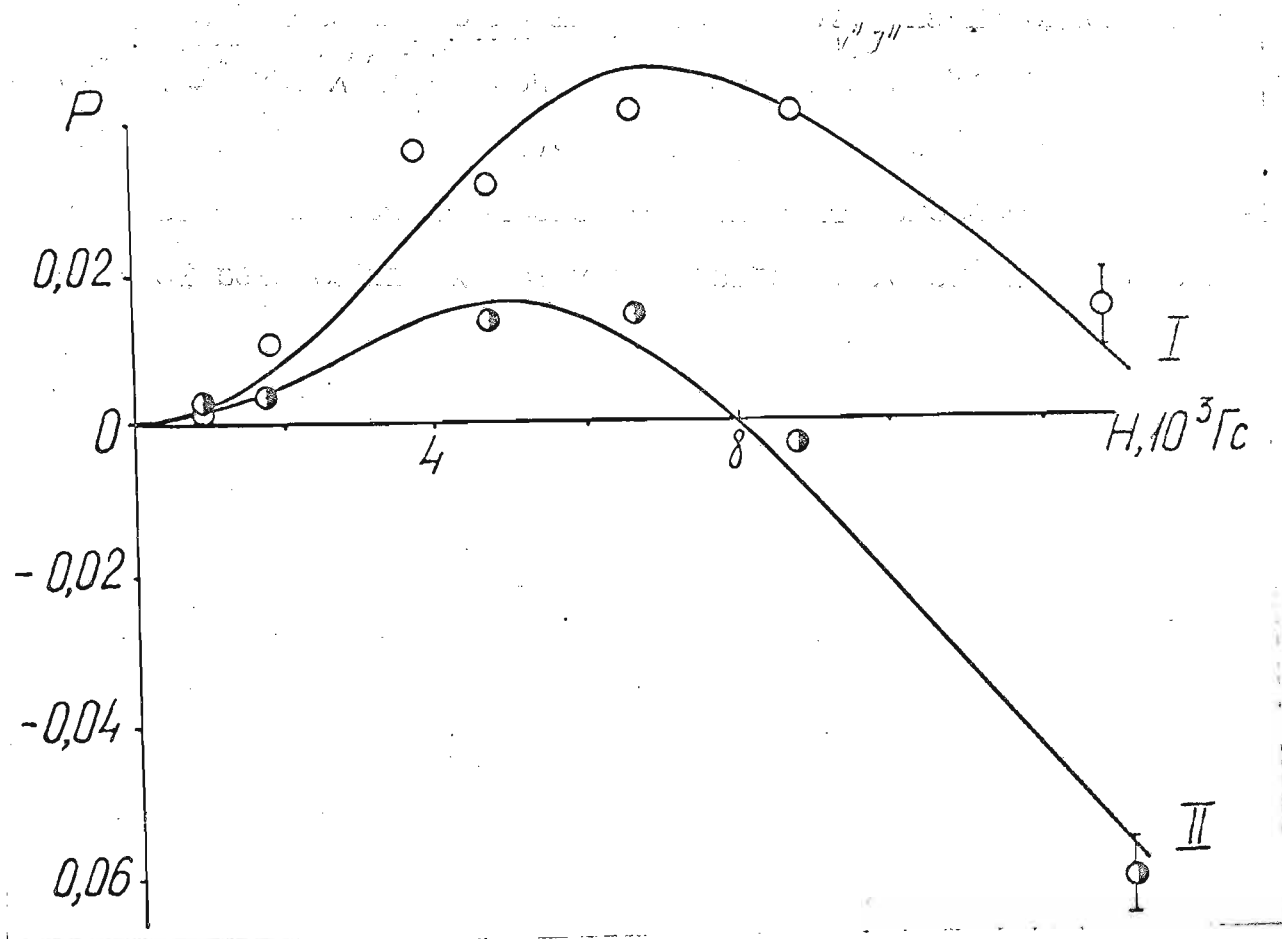


Рис. 3.20 Контурсы Ханле (I, 72)  $K_2 (X' \Sigma g^+)$  при различных значениях плотности мощности возбуждения  $\rho$  (I) = 3  $\rho$  (II)  
 I - 475 К,  $x = 2,0$ ,  $\gamma = 0,70 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$   
 II - 475 К,  $x = 0,7$ ,  $\gamma = 0,65 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$ .

рис. 3.21 в диапазоне изменения температур от  $T_0 = 467$  К до  $T = 525$  К, что соответствует изменению концентраций атомов калия от  $10^{14}$  до  $10^{15} \text{ см}^{-3}$ , концентрации молекул  $N_{K_2}$  от  $4 \cdot 10^{11}$  до  $5 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-3}$  /47/. Рассчитанная из бoльцмановского распределения концентрация поглощающих молекул  $n_{v'', j''}$  на исходном уровне ( $v'' = 1, j'' = 72$ )  $X' \Sigma g^+$  при этом составляла от  $2 \cdot 10^8$  до  $5 \cdot 10^9 \text{ см}^{-3}$ . Ширина лазерного луча была 1,4 мм на  $e^{-2}$  от максимума. Результаты позволяют определить константу скорости столкновительной релаксации  $k = 1,75 \cdot 10^{-9} \text{ см}^3 \text{ с}^{-1}$ . Усредненное по раз-

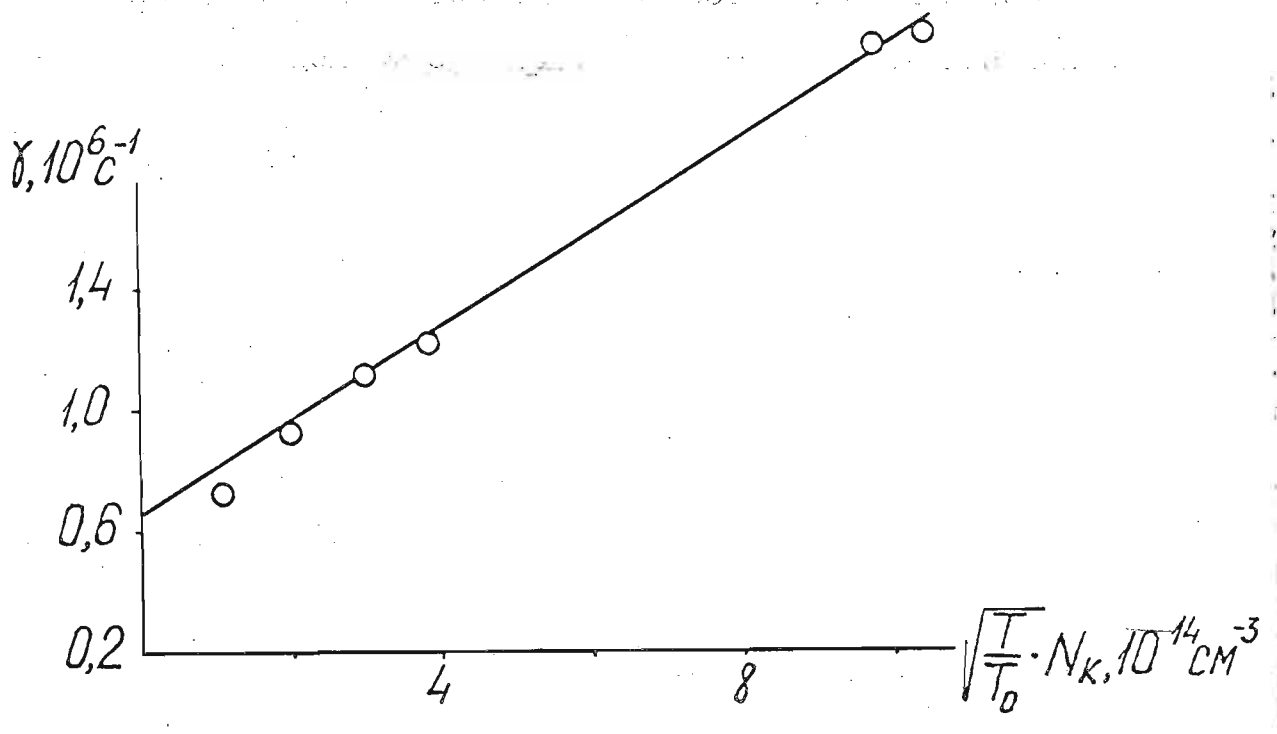


Рис. 3.21 Зависимость константы релаксации  $\gamma$  уровня  $(1,72) K_2 (\chi' \Sigma_g^+)$  от концентрации  $N_K$  атомов калия.

личным сериям измерений значение эффективного сечения релаксации при столкновениях  $K_2 + K$  составляет  $\sigma (K_2 + K) = (2.5 \pm 0.5) \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ .

Обсуждение результатов. Полученные методом пересечения уровней константы релаксации  $\gamma$ , учитывая сказанное в § 3.26, имеют смысл обратного времени разрушения поперечного выстраивания основного  $(V'', J'')$  уровня ( $\gamma$  определялась в экспериментальных условиях слабой накачки  $\mathcal{X} \lesssim 1$ , отсюда можно пренебречь когерентностью высших порядков  $|\Delta M''| = 4$ , см. рис. 3.4, 3.8). Вклад в  $\gamma$  вносят релаксационные процессы, уже обсужденные в § 2.1, как-то: (I) деориентация в пределах  $(V'', J'')$ , (II) уход с  $(V'', J'')$ -уровня, (III) диффузия частиц из-под луча. Первые два процесса, из которых второй есть основания полагать доминирующим, определяют суммарное эффективное сечение релаксации

когерентности, т.е. поперечной компоненты выстраивания, см. табл. 3.1.

Табл. 3.1

$(v'', J'')$ -уровень $\chi' \Sigma_g^+$ -состояния	Столкновения $A_2 + A$	эф.сечение $\sigma (A_2 + A)$ , $10^{-14} \text{см}^2$		
		эффект Ханле, гл. III	абс. интенс. гл. II	расчет, гл. II
(2,99) $Na_2$	$Na_2 + Na$	$2,0 \pm 0,4$	$1,2 \pm 0,5$	1,6
(1,72) $K_2$	$K_2 + K$	$2,5 \pm 0,5$	$2 \pm 1$	2,6

Как видно из табл. 3.1, полученные по эффекту Ханле сечения в пределах ошибок совпадают с измеренными в гл. II сечениями при некогерентном возбуждении, имеющими смысл релаксации продольного выстраивания. Этот экспериментально установленный факт хорошо согласуется с представлением о том, что преобладающим механизмом столкновительной релаксации является "уход" молекул с данного энергетического  $(v'', J'')$ -уровня. Здесь имеется, однако, некоторая особенность, заключающаяся в том, что подобное "тушение" уровня (феноменологически описываемое членом  $\gamma \sigma_a(\Omega)$  в (I.15), (3.1) непосредственно уширяет сигнал Ханле из-за уменьшения времени когерентности. Однако оно не способно разрушить продольное выстраивание при некогерентном возбуждении подобно тому, как тушение возбужденного состояния не вызывает его деполяризации. Но следует учесть, что релаксация в основном состоянии носит характер термализации, т.е. в стационарных условиях существуют обратные переходы, с той же частотой "поставляющие" на данный уровень молекулы с других, ненакачанных уровней (процесс описывается членом  $\lambda$  в (I.15), (3.1)). Именно такие процессы, выравнивающие распределение заселенности ансамбля уровней  $(v'', J'')$  по  $M''$ , вызывают релаксацию оптической накачки при некогерентном возбуждении, что

проявляется экспериментально, в частности, в тенденции к восстановлению степени поляризации флуоресценции, соответствующей изотропной заселенности по  $M''$ , см. гл. II. Таким же образом, кстати говоря, проявляется релаксация при диффузии молекул из-под лазерного луча и под луч.

Как и следовало ожидать, метод пересечения уровней дает меньшую ошибку, так как нет необходимости измерять интенсивности спектральной серии. Ошибка (см. табл. 3.1) определена по разбросу результатов. Основной причиной ошибки является малая амплитуда сигнала при слабых (в случае малых концентраций предельно слабых) световых потоках, что приводит к необходимости использовать длительные времена накопления и позволяет снять весьма ограниченное число точек  $P(H)$ .

Следует полагать, что дальнейшее развитие метода, в частности, возможность варьирования в более широких пределах частоты и мощности возбуждающего лазерного излучения сделает эффект Ханле оптически выстроенных либо ориентированных основных уровней двухатомных молекул важным источником информации о релаксационных процессах в основном электронном состоянии, а также о магнитных свойствах  $(V'', J'')$ -уровней.

### ЗАКЛЮЧИТЕЛЬНЫЕ ВЫВОДЫ

Основные результаты настоящей работы могут быть сформулированы следующим образом.

1. Разработана методика исследования оптической накачки определенных колебательно-вращательных уровней основного электронного состояния двухатомных молекул средствами лазерно-флуоресцентной спектроскопии.

2. Показано, что обнаруженный характер зависимости степени линейной поляризации флуоресценции от плотности мощности поглощаемого лазерного излучения, вызывающего оптический переход, является проявлением эффекта оптического выстраивания.

Эффект отождествлен для нескольких исходных колебательно-вращательных уровней ( $v'', J''$ ) молекул  $Na_2$  и  $K_2$  в  $X^1\Sigma_g^+$ -состоянии.

3. Впервые зарегистрирована прямая оптическая ориентация углового момента для определенного колебательно-вращательного уровня основного электронного состояния двухатомных молекул; детектирование проводилось по изменению степени циркулярности флуоресценции  $Na_2$ . Определена степень оптической ориентации уровня ( $v''=2, J''=45$ )  $Na_2(X^1\Sigma_g^+)$ .

4. Определены константы релаксации продольного выстраивания колебательно-вращательных уровней ( $v'', J''$ ) основного  $X^1\Sigma_g^+$ -состояния  $Na_2$ . Получены значения суммарных эффективных сечений процесса релаксации при столкновениях молекул  $Na_2$  с собственными атомами  $Na$ . Сравнивая измерения, проведенные для

уровней с различными значениями колебательных  $V''$  и вращательных квантовых чисел  $J''$  установлено, что сечения для  $(V''=3, J''=43)$ ,  $(V''=2, J''=99)$  в пределах ошибок совпадают между собой, а для  $(V''=14, J''=49)$  имеет несколько большую величину.

5. Определены константы релаксации продольного выстраивания уровня  $(V''=1, J''=72)$  основного  $X^1\Sigma_g^+$ -состояния  $K_2$ . Получено значение суммарного эффективного сечения процессов релаксации при столкновениях  $K_2$  с собственными атомами  $K$ . Измерены отношения эффективных сечений релаксации при соударениях с собственными атомами  $K_2 + K$  и примесными атомами инертных газов  $K_2 + He$ ,  $K_2 + Xe$ .

6. На основе анализа установленных экспериментами закономерностей и литературных данных выделены наиболее вероятные механизмы релаксации. Проведен оценочный теоретический расчет сечений релаксации в модели траекторий, приводящих к захвату сталкивающихся партнеров, базируясь на потенциале Ван-дер-Ваальса для больших расстояний между частицами. Результаты расчета согласуются с экспериментальными данными настоящей работы.

7. Впервые зарегистрирован эффект Ханле оптически выстроенного колебательно-вращательного уровня основного состояния двухатомных молекул. Эффект проявлялся во флуоресценции как наложение сигнала Ханле  $(V'', J'')$ -уровня основного электронного состояния на сигнал соответствующего возбужденного уровня и констатирован для  $(V''=2, J''=99) Na_2 (X^1\Sigma_g^+)$  и  $(V''=1, J''=72) K_2 (X^1\Sigma_g^+)$ .

8. По измерениям контура Ханле определены константы и эффективные сечения релаксации когерентности указанных уровней при столкновениях с собственными атомами типа  $Na_2 + Na$ ,  $K_2 + K$ . Установлено, что полученные сечения в пределах ошибок совпада-

ют с сечением релаксации продольного выстраивания.

9. Обнаружен дополнительный минимум кривой сигнала Ханле для  $K_2$ , который интерпретирован как проявление резонанса гексадекапольного момента уровня ( $v''=1, J''=72$ ) основного электронного  $X^1\Sigma_g^+$ -состояния, связанного с разрушением когерентности между зеемановскими подуровнями с  $|\Delta M''| = 4$ .

10. По эффекту Ханле определено время радиационного распада уровня ( $v'=8, J'=72$ ) возбужденного электронного  $B^1\Pi_u$ -состояния молекулы  $K_2$ .

В заключение выражаю глубокую и искреннюю признательность моему научному руководителю, кандидату физико-математических наук, доценту О.А.Шмиту за постоянную поддержку в работе, а также благодарность руководителю Проблемной лаборатории спектроскопии ЛГУ им.П.Стучки доктору физико-математических наук, профессору Э.К.Краулине за проявленный интерес к настоящей теме и младшему научному сотруднику М.Я.Таманису за участие в проведении экспериментов.

## ЛІТЕРАТУРА

1. York G., Gallagher A. High Power Gas Lasers Based on Alkali-Dimer A - X Band Radiation. - "JILA Report", Boulder, Colorado, 1974, No.114, p.1-53.
2. Hennesian M.A., Herbst R.L., Byer R.L. Optically Pumped Superfluorescent Na<sub>2</sub> Molecular Laser. - "J.of Appl.Phys.", 1976, v.47, p.1515-1518.
3. Bauer A., Sreenivasa Murthy K.S., Laser Action of Na<sub>2</sub> Molecules in a Sodium High Pressure Discharge Lamp. - "Appl.Phys.", 1977, v.12, p.391-393.
4. Wellegehausen B., Shahdin S., Friede D., Welling H. Continuous Laser Oscillation in Diatomic Molecular Sodium. - "Appl.Phys.", 1977, v.13, p.97-99.
5. Drullinger R.E., Zare R.N. Optical Pumping of Molecules - "J.Chem.Phys.", 1969, v.51, p.5532-5542.
6. Kastler A., New Directions in Atomic Physics, Yale University press, New Haven-London, 1972, v.2, p.1.
7. Kastler A. Quelques Suggestion Concentrant la production Optique et la Detection Optique d'une Inegalite de Population des Niveaux. - "J.Phys.et rad", 1950, t.11, p.255-265.
8. Brossel J., Sagalyn P., Bitter F. The Optical Detection of Radio-Frequency Resonance. - "Phys.Rev.", 1950, v.79,



- р. 225-226.
9. Скроцкий Г.В., Изюмова Т.Г. Оптическая ориентация атомов и ее применения. - УФН, 1961, т.73, с.423-470.
  10. Брюссель В. Оптическая накачка. - В кн. Лазеры, М., изд. иностр.лит., 1963, с.245-263.
  11. Карвер Т. Оптическая накачка. - УФН, 1964, т.84, с.325-342.
  12. Harper W. Optical Pumping. - "Rev.Mod.Phys.", 1972, v.44, p.169-249.
  13. Померанцев Н.М., Рыжков Н.М., Скроцкий Г.В. Физические основы квантовой магнитометрии. М., "Наука", 1972. 448 с.
  14. Герцберг Г. Спектры и строение двухатомных молекул. М., изд. иностр.лит., 1949. 404 с.
  15. Demtröder W., Mc.Clintock M., Zare R.N. Spectroscopy of  $\text{Na}_2$  Using Laser-Induced Fluorescence. - "J.Chem.Phys.", 1969, v.51, p.5495-5507.
  16. Johnson S.N., Sakurai K., Broida H.P. Fluorescence of  $\text{Na}_2$  Induced by a Helium-Neon Laser at 632.8 and 640.1 nm. - "J.Chem.Phys.", 1970, v.52, p.6441-6442.
  17. Tango W.J., Link I.K., Zare R.N. Spectroscopy of  $\text{K}_2$  Using Laser-Induced Fluorescence. - "J.Chem.Phys.", 1968, v.49, p.4264-4268.
  18. Феофилов П.П. Поляризованная люминесценция атомов, молекул и кристаллов. М., Физматгиз, 1959, 288 с.
  19. Собельман И.И. Введение в теорию атомных спектров. М., Физматгиз, 1963, 640 с.
  20. Фербер Р.С. Оптическое выстраивание и ориентация двухатомных молекул в основном электронном состоянии. - "Изв.АН ЛССР", 1978, вып. 8, с.85-99.
  21. Таманис М.Я., Фербер Р.С., Шмит О.А. Влияние концентрации паров на оптическую накачку молекул  $\text{Na}_2$ . - "Изв.АН Латв. ССР". Сер.физ.и техн.наук, 1975, т.4, с.33-35.

22. Таманис М.Я., Фербер Р.С., Шмит О.А.т Релаксация оптически накачанных молекул калия при столкновениях с атомами. - Тез. VI Всес. конф. по физике электр. и атомн. столкновений. Тбилиси, изд. АН СССР, 1975, с.202.
23. Ferber R., Janson M., Kraulina E., Schmit O.  
Atom Dimer Interaction in Laser Excited Alkali  
Vapours. Abstracts V Int. Conf. on Atomic Physics.  
Berkeley, 1976, p.146-147.
24. Таманис М.Я., Фербер Р.С., Шмит О.А. Оптическая ориентация двухатомных молекул циркулярно поляризованным лазерным излучением. - "Опт. и спектр.", 1976, т.41, с.925-928.
25. Таманис М.Я., Фербер Р.С., Шмит О.А. Изучение оптической накачки основного состояния двухатомных молекул по поляризации лазерно возбужденной флуоресценции. - В кн.: Сенситивизированная флуоресценция смесей паров металлов, вып.6, Рига, Латв.ун-т, 1977, с.116-137.
26. Таманис М.Я., Фербер Р.С., Шмит О.А. Эффект Ханле в  $\chi^1\Sigma_g^+$  -состоянии  $K_2$ . - Матер. XVIII Всес. съезда по спектроскопии. Горький. Теоретическая спектроскопия. М., АН СССР, 1977, с.17-20.
27. Грушевский В.Б., Таманис М.Я., Фербер Р.С., Шмит О.А.  
Релаксация оптически накачанных излучением *He-Ne* лазера молекул  $K_2$  при столкновениях с атомами. - "Опт. и спектр.", 1977, т.42, с.993-995.
28. Таманис М.Я., Фербер Р.С., Шмит О.А. Изучение столкновительной релаксации оптической накачки основного состояния  $K_2$  по сигналу Ханле. - Тез. VII Всес. конф. по физике электр. и атомн. столкновений. Петрозаводск, 1978, с.92.

29. Ferber R.S., Shmit O.A., Tamanis M.Ya. Ground State Hanle Effect in Optically Aligned Diatomic Molecules. Abstracts VI Internat. Conf. on Atomic. Physics. Riga, 1978, p.345-346.
30. Фербер Р.С. Определение констант и сечений релаксации  $\text{Na}_2$  и  $\text{K}_2$  в основном электронном состоянии методом лазерной оптической накачки. - Тез. IX Всес. конф. по когерентной и нелинейной оптике. Ленинград. Ч.II. М., 1978, с.54.
31. Фербер Р.С. Измерение поляризации люминесценции. В кн.: Спектральные измерения, ч.I, Рига, Латв.ун-т, 1978, с.24-40. (на лат.яз.)
32. Drullinger R.E., Zare R.N. Optical Pumping of Molecules. Relaxation Studies. - "J.Chem.Phys.", 1973, v.59, p.4225-4234.
33. Rosner S.D., Holt R.A., Gailey T.D. Measurement of the Zero-Field Hyperfine Structure of a Single Vibrational-Rotational Level of  $\text{Na}_2$  by a Laser-Fluorescence Molecular-Beam-Resonance Technique. - "Phys.Rev.Lett.", 1975, v.35, p.785-788.
34. Wall L.S., Bartlett K.G., Edwards D.F. Selective Excitation of Molecular Iodine. - "Chem.Phys.Lett.", 1973, v.19, p.274-277.
35. Dehmelt H.G., Jefferts K.B. Alignment of the  $\text{H}_2^+$  by Selective Photodissociation. - "Phys.Rev.", 1962, v.125, p. 1318-1322, and 1968, v.165, p.80-87.
36. Ling I.H., Wilson P.R. Molecular Alignment and Photofragment Spectroscopy. - "J.Chem.Phys.", 1976, v.65, p.881-891.

37. Белоконов М.В., Рубинов А.Н., Корда И.М. Применение внутрирезонаторной спектроскопии для исследования изменения населенности уровней при лазерной накачке молекул  $\text{J}_2$ . - "Квантовая электроника", 1975, т.2, с.2599-2602.
38. Папернов С.М., Шляпников Р.В., Янсон М.Л. Фотодиссоциация колебательно-возбужденных молекул. - В кн.: Сенсibilizированная флуоресценция смесей паров металлов, вып.6, Рига, Латв.ун-т, 1977, с.102-115.
39. Weber H.G., Glas H.J., Huber R., Kompitzas M., Schmidt G., Zu Puttlitz G. Optical Pumping Method for Studying Nuclear - Spin Polarization in Alkali Dimers. - "Z.Physik, 1974, Bd. 268, S. 91 - 95.
40. Gupta R., Happer W., Moe G., Park W. NMR of Diatomic Alkali Molecules in Optically Pumped Alkali Vapours. - "Phys.Rev. Lett.", 1974, v. 32, p. 574 - 577.
41. Kompitzas M., Weber H.G. A Study of the Nuclear Spin Polarization of  $\text{Na}_2$  by Optical Pumping. - "Chem.Phys. Lett", 1975, v. 35, p. 277 - 279.
42. Kamke W. NMR of  $\text{K}_2$  in Optically Pumped Potassium Vapour. - "Phys.Lett.", 1975, vol. 55 A, p. 15 - 16.
43. Huber R., Weber H.G., Nienstadt H., zu Puttlitz G. Nuclear Magnetic Moment of  $^{133}\text{Cs}$  in Cesium Ions and Dimers. - " Phys. Lett.," 1975, vol. 55 A, p.141 - 142.
44. Huber R., Konig F., Weber H.G. Magnetic Shielding Studies on Alkali Molecules  $\text{Na}_2$  and  $\text{Cs}_2$  by NMR. - "Z.Phys.A", 1977, Bd. 281, S. 25 - 33.
45. Weber H.G. Theoretical Studies of the Atom - Dimer Polarization Transfer. - "Z.Phys. A", 1975, Bd. 273, S. 9 - 14.

46. Huber R., Weber H.G. Experimental Studies of Ortho-Para-  
- Conversion in Optically Pumped  $\text{Na}_2$  - Molecules. Ab-  
stracts VI Int. Conf. on Atomic Physics. Riga, 1978,  
p. 32 - 33.
47. Несмеянов А.Н. Давление пара химических элементов.  
М.-Л., изд. АН СССР, 1961, 380 с.
48. Кондратьев В.Н., Никитин Е.Е. Кинетика и механизм газо-  
фазных реакций. М., "Наука", 1974, 558 с.
49. Кондратьев В.Н., Никитин Е.Е., Резников А.И., Уманский С.Я.  
Термические бимолекулярные реакции в газах. М., "Наука",  
1976, 191 с.
50. Nienstadt H., Schmidt G., Ullrich S., Weber H.G., zu Putlitz  
G. NMR of  $\text{Cs}^+$  Involving Photoionization, Optical Pumping  
and Charge Exchange. - "Phys. Lett.", 1972, v. 41 A, p.  
249 - 251.
51. Sinha M.P., Caldwell C.D., Zare R.N. Alignment of Molecules  
in Gaseous Transport. - "J.Chem.Phys"., 1974, vol. 61,  
p. 491 - 503.
52. Visser A.G., Bekooij J.P., Van der Meij L.K., De Vrengd C.,  
Korving J. Angular Polarization in Molecular Beams of  $\text{I}_2$   
and  $\text{Na}_2$ . - "Chemical Physics", 1977, v.20, p.391 - 408.
53. Катаев Д.М. Спектроскопия газов и паров, переохлажденных  
в сверхзвуковых потоках. Матер. XVIII Всес.съезда по  
спектроскопии, г.Горький. Теоретическая спектроскопия,  
Москва, АН СССР, 1977, с.13-16.
54. Teets R, Feinberg R., Hansch T.W., Schawlow A.L. Simpli-  
fication of Spectra by Polarization Labeling. - "Phys.Rev.  
Lett"., 1976, v. 37, p. 683 - 686.

55. Schawlow A.L., Lasers, Light and Matter. - JOSA, 1977, v.67, p. 140 - 148.
56. Шалагин А.М. Определение релаксационных характеристик поляризационным методом в нелинейной спектроскопии. - ЖЭТФ, 1977, т.73, с.99-III.
57. Рамзей Н. Молекулярные пучки. М., изд.иностр.лит., 1960, 4II с.
58. Melieres - Marechal M. - A., Lombardi B. Weak hfs Measurement Using the Magnetic Repolarization Effect. - "J.Chem. Phys." 1974, v.61, p. 2600 - 2608.
59. Barrat J.P. Etude de la diffusion multiple coherent de la lumiere de resonance optique. - "J.Phys. et Rad.," 1959. t.20, p. 541 - 549, 633 - 647, 657 - 669.
60. Barrat J.P. Density Matrix Formalism Applied to Light Beat Experiments. - "Proc.Roy.Soc.", 1961, v. 263 A, p. 371-377.
61. Дьяконов М.И., Перель В.И. Теория релаксации когерентности при диффузии резонансного излучения. - ЖЭТФ, 1964, т.47, с.1483-1495; Дьяконов М.И. К теории рассеяния света на газе при наличии магнитного поля.-ЖЭТФ, 1964, т.47, с.2213-2221.
62. Чайка М.П. Интерференция вырожденных атомных состояний. Л., изд.Ленинградского ун-та, 1975, 191 с.
63. Ducloy M. Non-linear Effects in optical Pumping with Laser. I. General Theory of the Classical Limit for Levels of Large Angular Momenta. - "J.Phys.", 1976, v.9, p.357 - 381.
64. Arecchi F.J., Courtens E., Gilmore R., Thomas H. Atomic Coherent States in Quantum Optics. -"Phys.Rev.A", 1972, v.6, p. 2211 - 2237.

65. Ducloy M. Nonlinear Effects in Optical Pumping of Atoms by a High - Intensity Multimode Gas Laser. General Theory. - "Phys.Rev. A", 1973, v.8, p. 1844 - 1859.
66. Decomps B., Dumont M., Ducloy M. Linear and Nonlinear Phenomena in Laser Optical Pumping. In: Topics in Applied Physics. v.2. Laser Spectroscopy. Springer Verlag, Berlin, 1976, p. 283 - 347.
67. Cohen - Tannoudji G. Optical Pumping with Lasers. In : "Atomic Physics", vol.4, Proc. of IV ICAP, Heidelberg, 1974, p.589 - 614. Plenum Press, New - York - London, 1975.
68. Беннет В. Эффект образования провалов на линиях лазера на смеси гелий-неон. - В кн.: "Лазеры", М., изд.иностр. лит., 1963, с.207-242.
69. Новиков Л.Н., Показаньев В.Г., Скроцкий Г.В. Когерентные явления в системах, взаимодействующих с резонансным излучением. - УФН, 1970, т.101, с. 273-302.
70. Zare R.N. Molecular Level - Crossing Spectroscopy. - "J.Chem.Phys.", 1966, v.45, p. 4510 - 4518.
71. Кузнецова Л.А., Кузьменко Н.Е., Кузяков Ю.А., Пластинин Ю.А. Вероятности оптических переходов электронно-колебательно-вращательных спектров двухатомных молекул. - УФН, 1974, т.113, с.185-325.
72. Ducloy M. Applicattion du formalisme des etats coherents de moment angulaire a quelques problemes de phisique atomique. - "J. de Physique", 1975, t.36, p. 927 - 941.
73. Скуиньш Г.А., Эрглис А.Э. Терморегулятор. - В кн.: Сенсибилизированная флуоресценция смесей паров металлов, вып.6, Рига, Латв.ун-т, 1977, с.144-149.

74. Орлов Р.В., Янсон У.В., Вейналд Я.Т. Схема счета фотонов на высокочастотном компараторе 52I SA2. - ПТЭ, 1977, в.4, с.123-124.
75. Орлов Р.В., Янсон У.В., Вейналд Я.Т. Измеритель слабых световых потоков. - В кн.: Сенсibilизированная флуоресценция смесей паров металлов, вып. 5, Рига, Латв.ун-т, 1975, с.124-128.
76. Хирд Г. Измерение лазерных параметров. М., "Мир", 1970, 539 с.
77. Mc Clintock M., Demtroder W., Zare R.N. Level - Crossing Studies of  $\text{Na}_2$  Using Laser - Induced Fluorescence. - "J.Chem. Phys.", 1969, v.51, p. 5509 - 5521.
78. Bergmann K., Demtroder W. Inelastic Collision Cross Sections of Excited Molecules. I. - "Z.Physik", 1971, Bd. 243 S.1 - 13; II, III - "J.Phys.B.: At. Mol. Phys.", 1972, v. 5, p. 1386 - 1395, and p. 2098 - 2106.
79. Бугрим Е.Д., Макренко С.И., Цикора И.Л. Спектроскопическое изучение рассеяния колебательной энергии молекулы  $\text{I}_2$ , возбуждаемой  $\text{He-Ne}$  лазером. - "Опт.и спектр.", 1973, т.34, с.64-69.
80. Бугрим Е.Д., Макренко С.И., Цикора И.Л. Об эффективности процессов колебательной дезактивации и тушения электронно-возбужденной молекулы  $\text{I}_2$ . - "Опт. и спектр.", 1974, т.37, с.1065-1069.
81. Kurzel R.B., Steinfield J.I. Energy Transfer Processes in Monochromatically Excited Iodine. VIII. Collisional Depolarization of Laser Induced Fluorescence. - "J. Chem.Phys.", 1972, v. 56, p. 5188 - 5189.
82. Field R.W., English O.D., Tanaka T., Harris D.O., Jennings D.A. Microwave Optical Double Resonance Spectroscopy. -



- "J.Chem. Phys.", 1973, v. 5, p. 2191 - 2199.
83. Cox A.P., Flynn G.W., Wilson E.B. Microwave Double - Resonance Experiments. - " J.Chem. Phys.", 1965, v. 42, p. 3094 - 3105.
84. Unland M.L., Flygare W.H. Direct Measurements of Rotational Relaxation. - "J.Chem.Phys.", 1965 v. 45, p. 2421 - 2432.
85. Gardiner W.C., Pickett H.M., Proffit M.H. Cross Sections for Reorientation and Rotational Relaxation of Oxygen. - "J.Chem.Phys.", 1975, v. 63, p. 2149 - 2152.
86. Ottinger Ch., Velasco R., Zare R.N. Some Propensity Rules in Collision - Induced Rotational Quantum Jumps. - "J.Chem. Phys.", 1970, v. 52, 1636 - 1643.
87. Lebed I.V., Nikitin E.E., Umanski S.Ya. Collision- Induced Rotational Transitions in the - States of Diatomic Molecules. Abstracts X International Conf. on the Physics of Electronic and Atomic Collisions. Paris, 1977, p. 758.
88. Whitehead J.C., Grice R. Semi - Empirical Potential Energy Surfaces for Alkali Atom - Dimer Exchange Reactions. - "Mol. Physics.", 1973, v. 26, p. 267 - 280, and 1976, v.31, p. 549 - 569.
89. Kraulinya E.K., Kopeikina E.K., Yanson M.L. Excitation Energy Transfer in Atom - Molecule Interaction of Sodium and Potassium Vapours. - "Chem. Phys. Lett.", 1976, v. 39, p. 565 - 567.
90. Копейкина Э.К. Перенос электронной энергии от молекул натрия и калия к их атомам. Канд.диссертация, Латв.Госуниверситет, Рига, 1976, 167 с.
91. Фриш С.Э. Некоторые вопросы интенсивностей спектральных линий. - УФН, 1951, т.43, с.512-535.
92. Свет Д.Я. Объективные методы высокотемпературной пирометрии. М., "Наука", 1968, 240 с.

93. Fairbank W.H., Hansch T.W., Schawlow A.L. Absolute Measurement of Very Low Sodium - Vapour Densities Using Laser Resonance Fluorescence. - JOSA, 1975, v.65, p. 199 - 209.
94. Смирнов Б.М. Атомные столкновения и элементарные процессы в плазме. М., Атомиздат, 1968, с.43.
95. Molof R.W., Miller T.M., Schwartz H.L., Bederson B., Park J.T. Measurements of the Average Electric Dipole Polarizabilities of the Alkali Dimers. - "J.Chem.Phys.", 1974, v.61, p. 1816 - 1822.
96. Feinberg R., Teets R.E., Rubbmark J., Schawlow A.L. Ground State Relaxation Measurements by Laser - Induced Depopulation. - "J.Chem.Phys.", 1977, v.66, p.4330 - 4333.
97. Wood R.W., Ellet A. Polarized Resonance Radiation in Weak Magnetic Fields. - "Phys.Rev.", 1924, v.24, p. 243 - 254.
98. Hanle W. Uber magnetische Beeinflussing der Polarization der Resonanzfluoreszenz. - "Zeit. f. Physik", 1924, Bd. 30, S. 93 - 105.
99. Breit G. Quantum Theory of Dispersion. - "Rev.Mod.Phys.", 1933, v.5, p. 91 - 141.
100. Colegrove F.D., Franken P.A., Lewis P.R., Sands R.H. - "Phys.Rev.Lett.", 1959. v.3, p. 420 - 422.
101. Показаньев В.Т., Скроцкий Г.В. Пересечение и антипересечение атомных подуровней и их применение в атомной спектроскопии. - УФН, 1972, т.107, с.623-656.
102. Новиков Л.Н., Скроцкий Г.В., Соломахо Г.И. Эффект Ханле. - УФН, 1974, т.113, с.597-625.

103. Александров Е.Б. Оптические проявления интерференции невырожденных атомных состояний. - УФН, 1974, т.113, с.597-625.
104. Летохов В.С., Чеботаев В.В. Принципы нелинейной лазерной спектроскопии. М., "Наука", 1975, 279 с.
105. Dehmelt H.G. Slow - Spin Relaxation of Optically Polarized Sodium Atoms. - "Phys. Rev.", 1957, v. 105, p. 1487 - 1489.
106. Александров Е.Б., Ходовой В.А. По поводу эксперимента Демелта. - "Опт. и спектр", 1963, т.14, с.823.
107. Broyer M., Lehmann I.C., Vigue J.G.  $g$ -Factors and Lifetimes in the B State of Molecular Iodine. - "J. de Phys.", 1975, v. 36, p. 235 - 241.
108. Dalby F.W., Vigue J., Lehmann J.C. On Hanle Effects in the B ( $^3\Sigma_u^-$ ) - X ( $^3\Sigma_g^-$ ) Band System of the Se<sub>2</sub> Molecule. - "Can. J. Phys.", 1975, v. 53, p. 140 - 144.
109. Котликов Е.Н. Эффект Ханле на вращательном уровне состояния B<sup>3</sup>Π<sub>g</sub> азота. - "Опт. и спектр.", 1976, т.41, с.730-735.
110. Van der Linde J., Dalby F.W. Zero Field Level Crossing in Excited States of H<sub>2</sub>. - "Can. J. Phys.", 1972, v. 50, p. 287 - 297.
111. Devleteger G., Eisendrath H. Hanle Effect in Br<sub>2</sub> Molecules Abstracts V ICAP, Berkeley, California, 1976, p. 163.
112. Ducloy M., Vigue J., Broyer M. Laser Saturated Hanle Effect: Power - Broadening and Deformation of the Lorentzian Shape. In: Spectroscopie Sans Largeur Doppler de Systemes Moleculaires Simples, Colloques Internat. du C.N.R.S., Paris 1974, № 217, p. 241 - 246.

113. Broyer M., Dalby F.W., Vigue J., Lehmann J.C. Observation of a New Effect on the Fluorescence of  $J_2$ , Excited by  $Ar^+$  and  $Kr^+$  Laser. - "Can. J. Phys.", 1972, v. 51, p. 226 - 228.
114. Solartz R., Levy D. Non-linear Level Crossing in the  $X^1\Sigma_g^-$  State of Iodine. - "Chem. Phys. Lett.," 1972, v.17, p. 35 - 38.
115. Крупенникова Т., Чайка М. Определение времени жизни  $2p^5 3p(2p^4)$  состояния неона. - "Опт. и спектр", 1966, т.20, с.1088-1089.
116. Алипиева Е.А. Определение констант релаксации возбужденных состояний *Cd* и *Hg* методом пересечения уровней. Кандидатская диссертация, Л., Ленингр. ГУ, 1977, 132 с.
117. Gawlik W., Kowalski J., Neumann R., Trager F. Observation of the Electric Hexadecapole Moment of Free Na Atoms in a Forward Scattering Experiment. - "Optics communications", 1974, v. 12, p. 400 - 404.
118. Таунс Ч., Шавлов А. Радиоспектроскопия. М., изд. иностр. лит., 1959, 756 с.
119. Brooks R.A., Anderson C.H., Ramsey N.F. Rotational Magnetic Moments of the Alkali Molecules. - "Phys. Rev.", 1964, v. 136, p. A 64 - A 68.
120. Ребане Т.К. Простая модель для вращательного магнитного момента молекулы. - "Вестник Ленинградского ун-та", 1965, № 4, с.30-35.
121. Kusch P., Millman S., Rabi I.I. The Nuclear Magnetic Moments of  $N^{14}$ ,  $Na^{23}$ ,  $K^{39}$  and  $Cs^{133}$ . - "Phys. Rev.", 1939, v. 55, p. 1176 - 1181.
122. Фриш С.Э. Оптические спектры атомов. М.-Л., изд. Физ.-мат. лит., 1963, с.536.

123. Logan R.A., Cote R.E., Kusch P. The Sign of the Quadrupole Interaction Energy in Diatomic Molecules. - "Phys. Rev.", 1952, v. 86, p. 280 - 287.
124. Tango W.J., Zare R.N. Radiative Lifetime of the  $B^1\Pi_u$  State of  $K_2$ . - "J.Chem. Phys.", 1970, v. 53, p. 3094 - 3100.
125. Baumgartner G., Demtröder W., Stock M. Lifetime - Measurements of Alkali - Molecules Excited by Different Laserlines. - "Z. Physik.", 1970, Bd. 232, S. 462 - 472.
126. Demtröder W., Stetzenbach W., Stock M., Witt J. Lifetimes and Franck - Condon Factors for the  $B^1\Pi_u \rightarrow X^1\Sigma_g^+$  System of  $Na_2$ . - "J. of Molec. Spectr.", 1976, v. 61, p. 382 - 394.

П Р И Л О Ж Е Н И Я

## Приложение I.

Спектроскопические константы и времена жизни молекул  $Na_2$  и  $K_2$ .

Приведенные в табл. П.1.1 и П.1.2 спектроскопические константы основного электронного состояния ( $X^1\Sigma_g^+$ )  $Na_2, K_2$  соответствуют обозначениям, принятым в /14/ и измерены авторами работ /15,17/ по спектрам лазерно-возбужденной флуоресценции.

Приведенные в табл. П.1.3, П.1.4 факторы Франка-Кондона  $f_{v'J', v''J''}$  связаны с относительными интенсивностями  $I$  (для  $Q$ -серий) как

$$\frac{I(v_1'' J)}{I(v_2'' J)} = \frac{\nu^4(v'J \rightarrow v_1'' J) \cdot f_{v'J, v_1'' J}}{\nu^4(v'J \rightarrow v_2'' J) \cdot f_{v'J, v_2'' J}} \quad (\text{П.1.1})$$

где  $v_1''$ ,  $v_2''$  - колебательные числа нижнего уровня,  $\nu$  - частота перехода. Значения факторов Франка-Кондона рассчитаны авторами /126/ из хода потенциальных кривых  $X^1\Sigma_g^+$  и  $B^1\Pi_u$ -состояний, которые в свою очередь рассчитаны ими методом  $RKR$ , используя измеренные спектроскопические константы. Факторы в табл. П.1.3 рассчитаны для гипотетической  $Q$ -ветви с  $J=0$ , однако изменение вращательного числа до  $J \leq 40$  приводит к ошибкам не более 5% /15/. Факторы табл. П.1.4 рассчитаны для  $J=98$ . Значения, меньшие  $10^{-3}$ , не приводятся.

Времена жизни различных  $(v', J')$  уровней  $(B' \Pi_u) Na_2$ , приведенные в П.И.5, измерены в работе /126/ методом задержанных совпадений; аналогичным образом ими получены данные о зависимости времени жизни от давления атомов  $Na$ , приведенные на рис. П.И.1.

Табл. П.И.1 Спектроскопические константы основного  $X' \Sigma_g^+$  -состояния молекулы  $Na_2$ ,  $cm^{-1}$  /15/

$$\begin{aligned} \omega_e &= 159,1268 \\ \omega_e x_e &= 0,7262 \\ \omega_e y_e &= -9,154 \cdot 10^{-4} \\ \omega_e z_e &= -5,02 \cdot 10^{-5} \\ B_e &= 0,154853 \\ \mathcal{L}_e &= 8,5637 \cdot 10^{-4} \\ \gamma_e &= -7,646 \cdot 10^{-6} \\ D_e &= 6,552 \cdot 10^{-7} \\ \beta_e &= 2,243 \cdot 10^{-9} \\ \delta_e &= 2,0 \cdot 10^{-10} \end{aligned}$$

Табл. П.И.2 Спектроскопические константы основного  $X' \Sigma_g^+$  -состояния молекулы  $K_2$ ,  $cm^{-1}$  /17/

$$\begin{aligned} \omega_e &= 92,021 \\ \omega_e x_e &= 2,829 \cdot 10^{-1} \\ \omega_e y_e &= -2,055 \cdot 10^{-5} \\ B_e &= 5,6743 \cdot 10^{-2} \\ \mathcal{L}_e &= 1,65 \cdot 10^{-4} \\ D_e &= 8,63 \cdot 10^{-8} \\ \delta_e &= 1,5 \cdot 10^{-7} \end{aligned}$$



Табл. П.1.3 Факторы Франка-Кондона (умноженные на  $10^3$ )  
 для  $B'\Pi_u \longleftrightarrow X'\Sigma_g^+$  переходов в  $Na_2$  с  
 вращательными уровнями  $J = 0$  /126/

$v'' \backslash v'$	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
0	59	153	209	203	156	102	59	31	15	7	3	1	1	-	-
1	182	195	64	-	39	99	123	110	80	50	29	15	8	4	2
2	263	50	24	110	80	12	7	49	87	95	81	58	37	22	12
3	239	10	128	34	12	77	72	19	27	62	79	76	60	42	27
4	152	122	53	30	92	19	11	63	62	21	-	15	45	65	68
5	71	193	5	108	6	47	68	9	13	55	54	21	-	9	33
6	25	155	104	30	56	59	1	56	48	3	15	49	47	19	1
7	7	81	174	15	87	3	74	19	13	56	32	-	17	44	42
8	2	30	139	120	6	84	15	35	55	2	25	50	20	-	18
9	-	8	69	166	45	50	36	54	2	54	28	1	34	42	13
10		2	24	115	145	3	85	2	66	10	22	49	9	7	37
11			6	50	149	92	10	76	10	40	39	-	39	33	1
12			1	15	85	158	36	47	39	42	8	53	9	13	41
13				3	31	120	137	3	77	6	62	1	37	33	-
14					8	54	147	95	5	79	2	52	20	11	43
15					1	16	83	156	47	32	54	24	24	43	-
16						3	29	113	145	12	63	21	49	3	47
17							7	47	138	114	-	79	1	58	3
18							1	13	70	154	74	12	71	5	44
19								2	22	96	156	35	39	46	27
20									5	35	122	141	8	65	17
21									1	8	52	144	112	-	77
22										1	14	73	158	76	11
23											2	22	97	160	40

Табл. П.І.4 Факторы Франка-Кондона (умноженные на  $10^3$ ) для  
 $B'\Pi_u \rightarrow X'\Sigma_g^+$  переходов в  $Na_2$  с вращательными уровнями  
 $J = 98$  /126/

$v'' \backslash v'$	0	I	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
0	48	129	187	194	162	116	74	43	24	12	6	3	1	1	
I	162	196	85	5	16	68	104	108	90	65	43	26	14	8	4
2	255	69	9	90	93	32		19	56	80	82	70	53	36	23
3	247	3	117	56	1	51	77	42	5	4	28	54	66	65	55
4	166	102	73	11	86	41		35	63	45	12		12	33	50
5	81	192		103	22	27	70	31		26	52	43	17	1	4
6	30	169	83	50	52	74	4	29	58	23		20	43	40	21
7	8	93	173	4	96	7	57	43		33	48	18		15	35
8	2	36	154	102	19	66	37	10	59	21	2	33	41	15	
9		10	81	170	25	71	13	68	4	29	47	9	5	32	35
10		2	29	131	134		88	3	50	34	1	38	34	3	7
11			7	61	162	69	28	56	33	13	53	10	10	39	24
12			1	19	101	159	16	69	14	61	1	36	35	1	17
13				4	39	138	123		83	1	54	21	8	42	19
14				1	10	67	160	69	22	61	22	23	45	1	22
15					2	21	100	159	22	58	24	51	1	44	20
16						4	38	133	133	1	80	1	58	8	21
17							9	61	157	89	10	73	8	39	31
18							1	17	89	165	43	39	43	33	11
19								3	30	119	153	10	68	12	54
20									6	47	147	122		80	
21									1	11	70	165	80	15	66
22										2	19	97	170	38	44
23											3	31	126	157	8
24												6	48	153	128
25												1	10	69	173

Табл. П.І.5      Времена жизни и соответствующие  
возбуждающие переходы для различных  
уровней  $(v', J') B' \Pi_u (Na_2)$  /126/

Длина волны лазера	Возбужденный молекулярный переход				Времена жизни $\tau$ $10^{-9} c$		
$\lambda, nm$	$v''$	$J''$	$v'$	$J'$	$\tau_{obs}$	$\Delta\tau_{obs}$	$\tau_{calc}$
457.935	7	31	27	31	7.42	0.1	7.404
	5	38	23	39	7.20	0.2	7.375
	8	24	29	25	7.41	0.2	7.404
	7	43	28	43	7.40	0.13	7.414
465.789	4	39	17	38	7.34	0.1	7.285
472.686	1	37	9	38	7.11	0.08	7.158
476.486	3	13	10	12	7.13	0.08	7.150
	0	28	6	27	7.05	0.08	7.096
	0	98	9	98	7.24	0.1	7.309
	2	117	14	118	7.50	0.1	7.458
487.986	3	43	6	43	7.10	0.08	7.118
	5	55	9	56	7.16	0.1	7.190
	6	41	10	42	7.17	0.1	7.180
	2	98	7	98	7.28	0.1	7.278
	7	99	15	98	7.47	0.2	7.400
	6	87	12	88	7.47	0.2	7.322
501.716	6	38	5	37	7.10	0.1	7.093
	5	87	5	88	7.13	0.1	7.213
	3	125	5	124	7.38	0.25	7.351
514.532	12	65	9	64	7.18	0.1	7.208
	6	59	1	60	7.16	0.1	7.075
	6	83	2	82	7.14	0.1	7.148
	14	49	11	49	7.21	0.1	7.208
	2	151	0	152	7.52	0.2	7.404

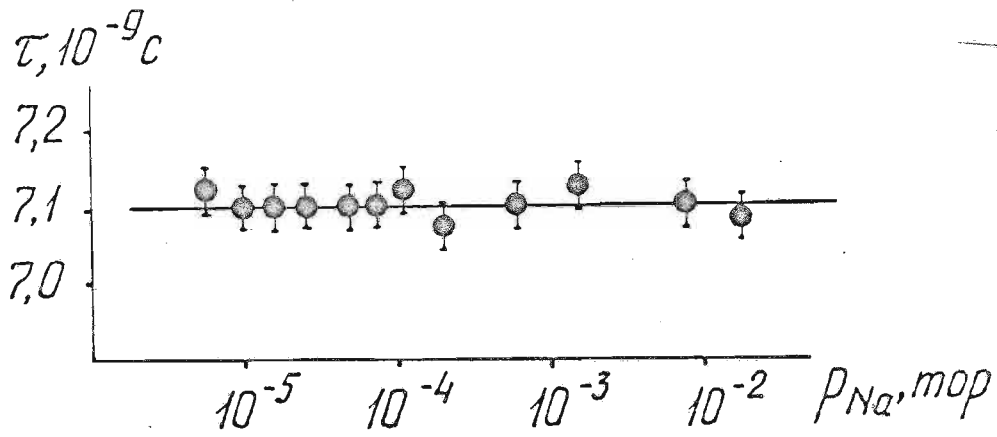


Рис. П.І.І Экспериментально измеренная зависимость времени жизни  $\tau$  для  $Na_2 (v' = 6, J' = 43) B^1\Pi_u$  от давления  $p_{Na}$  атомов  $Na$  /126/.

## Приложение 2.

Спектры флуоресценции  $Na_2$  и  $K_2$ , возбужденной линиями  $Ar^+$  и He-Ne лазера.

Приводимые ниже спектры флуоресценции получены на экспериментальной установке, изображенной на рис. I.17.

В качестве спектрального прибора использовался двойной монохроматор ДФС-12. Приемником излучения служили ФЭУ-17а (рис. П.2.1, П.2.2) либо ФЭУ-79 (рис. П.2.3, П.2.4).

Спектры иллюстрируют непосредственную запись на самопишущем потенциометре КСП-4 без поправок на спектральные характеристики ФЭУ и монохроматор. На рисунках изображены лишь участки спектров. Указаны линии только тех серий флуоресценции, которые соответствуют переходам с  $(v'', J'')$ -уровней  $X^1\Sigma_g^+$ -состояния, для которых изучался эффект оптической накачки, см. табл. I.2. Расшифровка спектров проводилась с использованием данных работ /15-17/, см. также Приложение I.

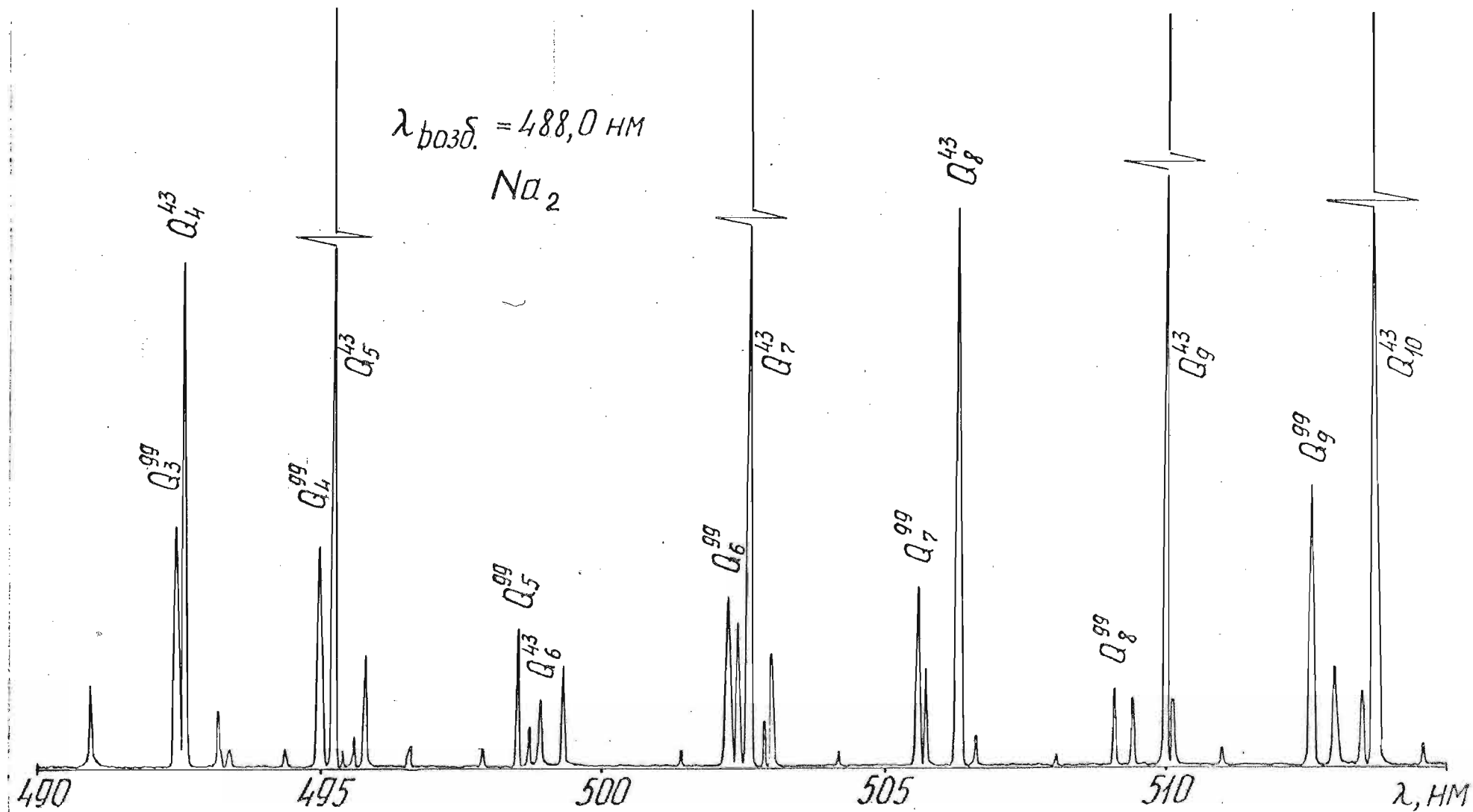


Рис. П.2.1 Участок спектра  $B' \Pi_u \rightarrow X' \Sigma_g^+$  флуоресценции  $\text{Na}_2$ , возбужденной линией 488.0 нм  $\text{Ar}^+$ -лазера. Отмечены линии, возбужденные переходом  $(3,43) \rightarrow (6,43)$  и  $(2,99) \rightarrow (7,99)$ .

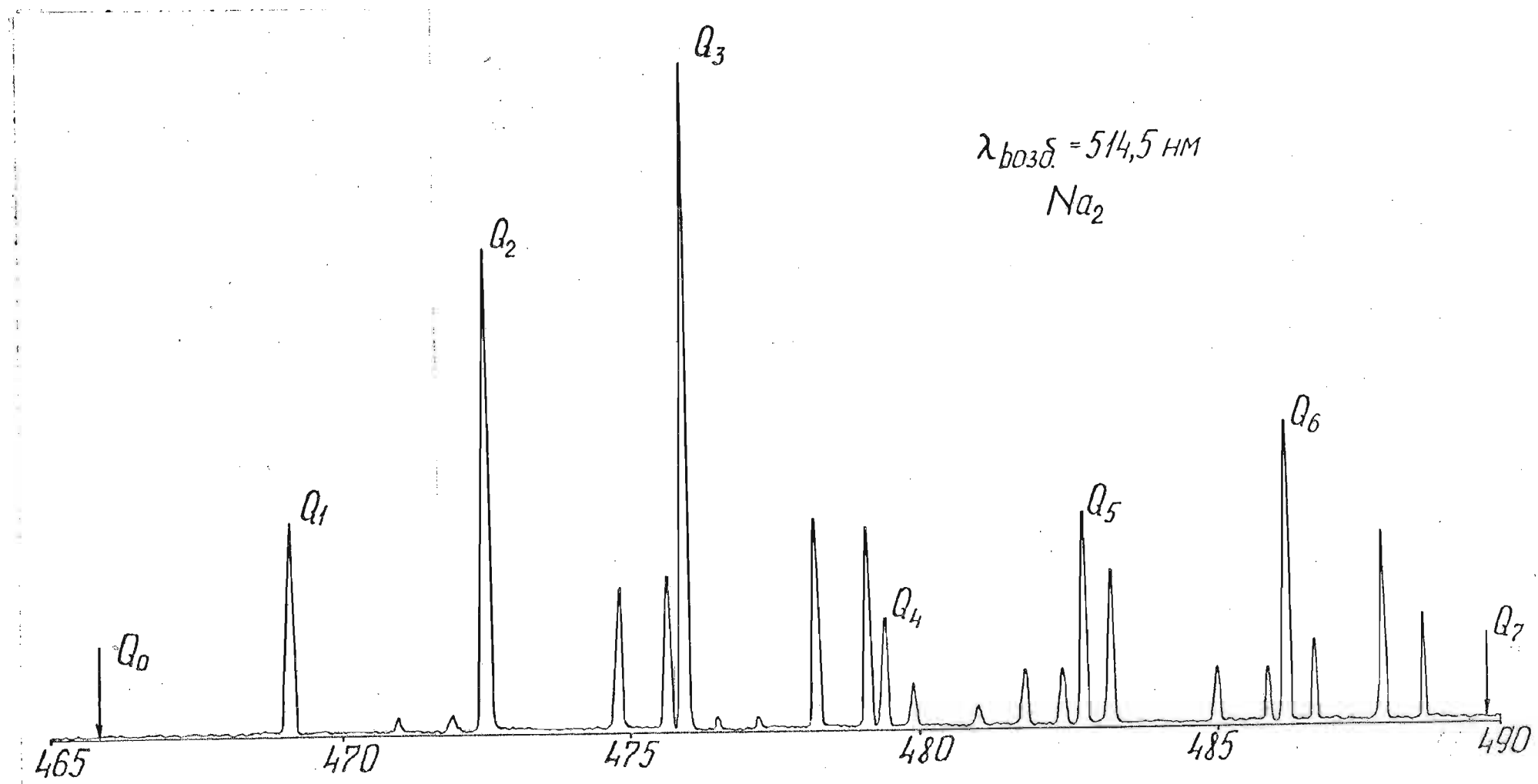


Рис. П.2.2 Участок спектра  $B' \Pi_u \rightarrow X' \Sigma_g^+$  флуоресценции  $\text{Na}_2$ , возбужденной линией 514.5 нм  $\text{Ar}^+$ -лазера. Отмечены линии, возбужденные переходом  $(I4,49) \rightarrow (II,49)$ .

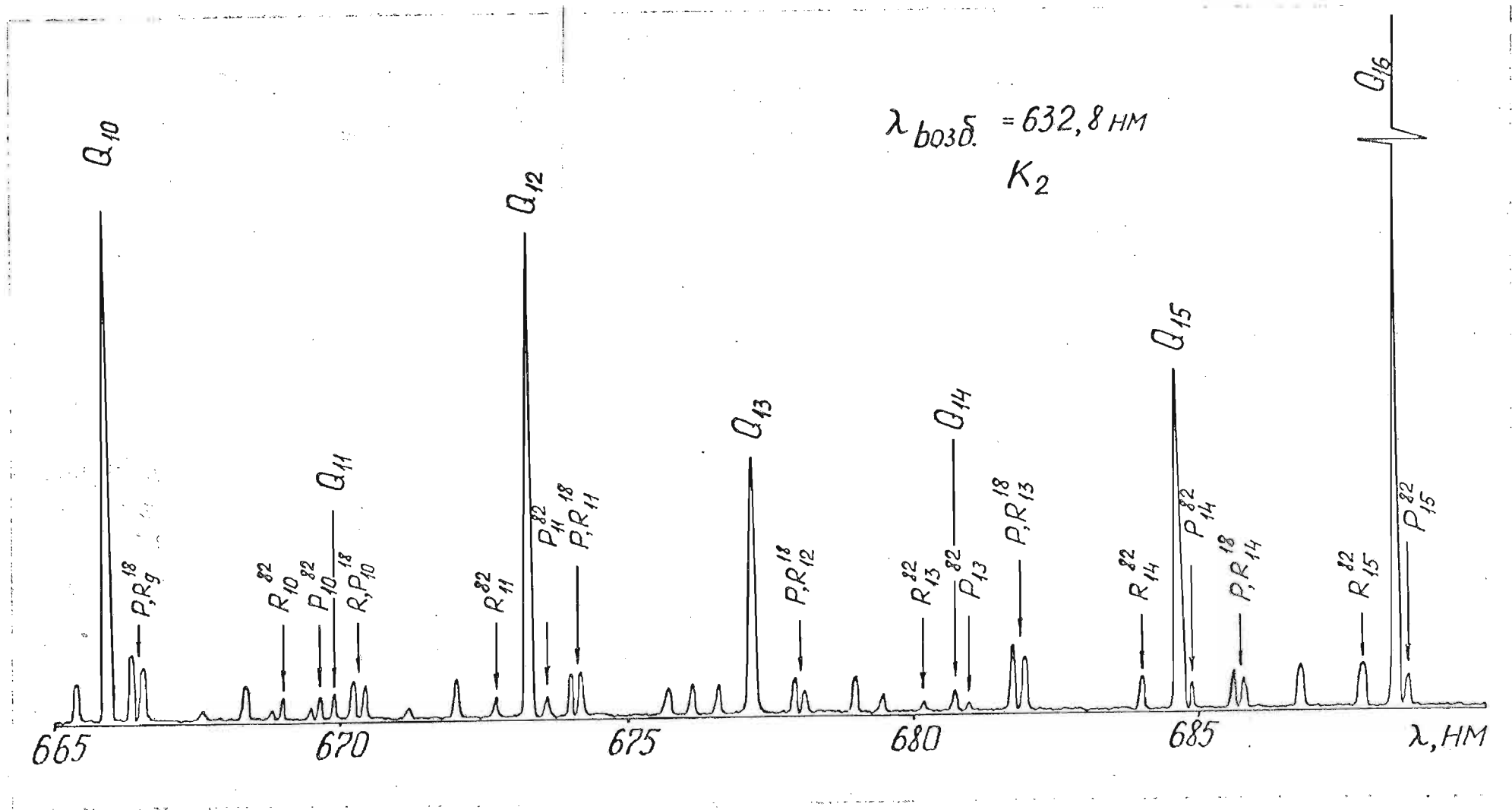


Рис. П.2.3 Участок спектра  $B'\Pi_u \rightarrow X'\Sigma_g^+$  флуоресценции  $K_2$ , возбужденной линией 632.8 нм He-Ne лазера. Отмечены линии, возбужденные переходами  $(1,72) \rightarrow (8,72)$ ,  $(0,18) \rightarrow (6,17)$  и  $(0,82) \rightarrow (7,81)$ .



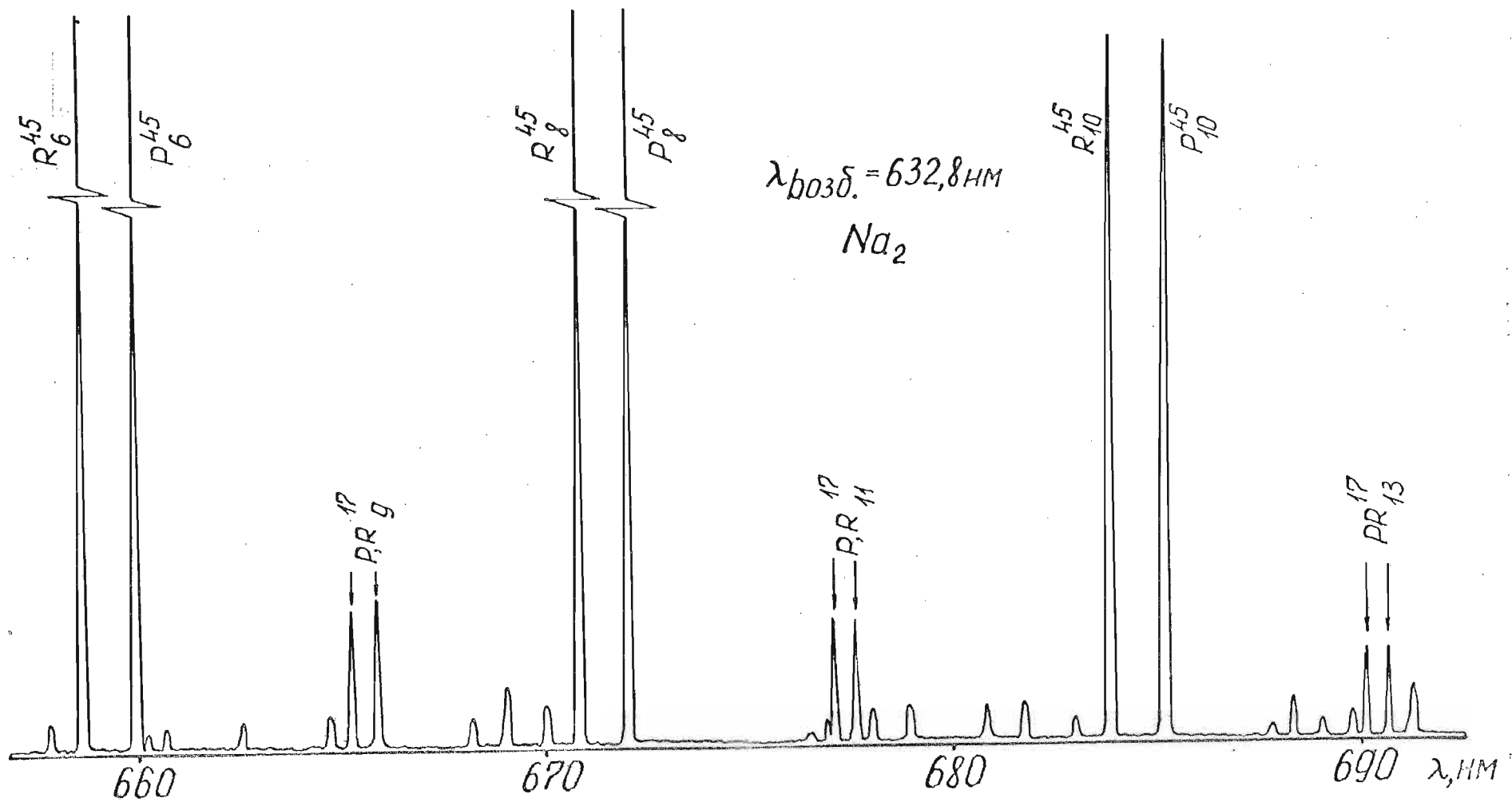


Рис. П.2.4 Участок спектра  $A'\Sigma_u^+ \rightarrow X'\Sigma_g^+$  флуоресценции  $\text{Na}_2$ , возбужденной линией 632.8 нм  $\text{He-Ne}$  лазера. Отмечены линии, возбужденные переходом  $(2,45) \rightarrow (14,44)$  и  $(4,17) \rightarrow (16,1)$

## Приложение 3

Измерение абсолютных квантовых  
потоков флуоресценции

Измерение как абсолютных, так и относительных квантовых потоков флуоресценции, см. § 2.2, производилось путем сравнения с яркостью эталонного источника света – вольфрамовой ленточной лампы (или так называемой "банд-лампы") СИ-10-300 У. Лента излучателя располагалась в месте, где находился исследуемый участок молекулярного излучения.

Величина яркости излучения банд-лампы  $K_{\lambda, T}^{bl}$  на длине волны  $\lambda$  дается выражением /91/

$$K_{\lambda, T}^{bl} = b_{\lambda, T} \cdot \varepsilon_{\lambda, T} \cdot \frac{d\lambda}{d\ell} \cdot \Delta\ell, \quad (\text{П.2.1})$$

в котором  $b_{\lambda, T}$  – спектральная яркость абсолютно черного тела при температуре  $T$ ,  $\varepsilon_{\lambda, T}$  – испускательная способность вольфрама, определенная следуя /92/;  $\frac{d\lambda}{d\ell}$  – линейная дисперсия монохроматора,  $\Delta\ell$  – ширина его входной и выходной щелей. Мощность спектральной линии от единицы объема источника флуоресценции  $E_j^{lm}$  равна /91/

$$E_j^{lm} = \frac{4\pi}{a} \cdot K_j^{lm} = \quad (\text{П.2.2})$$

$$= \frac{4\pi}{a} K_j^{bl} \cdot \frac{i_{\parallel}^{lm(j)}/r_j^{lm}}{i_{\parallel}^{bl(j)}/r_j^{bl}} \cdot \frac{1+2 \frac{1-P_{bl}}{1+P_{bl}}}{1+2 \frac{1-P_{lm}}{1+P_{lm}}} \cdot \chi_{\parallel}^{-1}$$

Здесь  $a$  — ширина светящегося столбика флуоресценции,  $i_{\parallel}^{lm}(j)$ ,  $i_{\parallel}^{bl}(j)$  — показания самопишущего потенциометра КСП-4, рис. I.17, для линии люминесценции и эталонной лампы соответственно (на длине волны  $\lambda_j$  при положении (I) анализатора  $A_3$ ). Так как величина  $i_{\parallel}^{lm}(j)$  измеряется непосредственно в условиях эффекта оптической накачки, ее необходимо разделить на коэффициент нелинейности  $\chi_{\parallel}$ , определяемый из измеренных значений степени поляризации, см. рис. I.10, чтобы можно было использовать выражение (2.3), § 2.2, с соответствующей бoльцмановскому распределению концентрацией  $n_{v'', j''}$ . В отношении  $r_j^{lm}/r_j^{bl}$  величина  $r_j^{lm}$  есть коэффициент пропускания для ячейки флуоресценции и выходного окошка печи, рис. I.18, а  $r_j^{bl}$  — коэффициент пропускания выходного окошка эталонной банд-лампы. Подчеркнем, что вся остальная часть регистрирующей системы рис. I.17 должна быть строго идентичной при измерениях  $i_{\parallel}^{lm}(j)$  и  $i_{\parallel}^{bl}(j)$ . Последний множитель в (П.2.2) учитывает различную степень линейной поляризации для излучения банд-лампы и спектральной линии.

Формула (П.2.2) позволяет определить квантовый поток

$\eta_{lm}(j) = E_j^{lm}/h\nu_j$  на одной спектральной линии. Переход к  $\eta_{lm}$  от всей серии, см. (2.3), § 2.2, осуществлялся через измеренные относительные интенсивности линий хорошо разрешенных, см. Приложение 2, спектров флуоресценции. Отметим, что измеренные распределения интенсивностей серии излучения по колебательным числам нижнего уровня хорошо согласуются с факторами Франка-Кондона, рассчитанными для  $Na_2$  в /15,126/, см. также Приложение I. Концентрация молекул на исходном  $(v'', J'')$ -уровне рассчитывалась в предположении бoльцмановского распределения по колебательно-вращательным подуровням  $\chi' \Sigma_g^+$  — состояния с учетом различного статистического веса орто- и парасостояний /71/; молекулярные константы для  $Na_2$  использовались из работы

/15/, для  $K_2$  из /17/, см. Приложение I. Общая концентрация двухатомных молекул в щелочных парах определялась по температуре, следуя /47/.

Как известно, метод измерения абсолютных квантовых потоков излучения обычно приводит к значительным погрешностям. Поэтому при проведении экспериментов были приняты следующие меры для уменьшения ошибки и улучшения воспроизводимости результатов. Во-первых, была обеспечена высокая стабильность излучения люминесцентной лампы — не хуже 3% за несколько часов работы. Во-вторых, измерения температуры проводились прецизионным оптическим пирометром ЭОП-66, дающим при измерении температуры ленты накаливания (2300 К) ошибку всего около  $\pm 4$  К. Коэффициенты пропускания  $r_j^{lm}$ ,  $r_j^{bl}$  определялись фотометрированием. Оценка парциальных ошибок измерений входящих в (П.2.1), (П.2.2) величин позволила в свою очередь грубо оценить относительную погрешность измерения константы скорости  $V_p$  как имеющую величину порядка 30%.

## Приложение 4

Программа для расчета контура Ханле  
( $|\Omega\rangle$  - представление).

В настоящем Приложении приведены ЭВМ-программы, использовавшиеся для расчета зависимостей  $I^{\pi_z}(H)$ ,  $I^{\sigma_y}(H)$ ,  $P(H)$ . Расчет проведен по методу решения системы уравнений (3.8), изложенному в § 3.2а.

Как следует из выражений (3.14), (3.15), для вычисления значений интенсивностей флуоресценции  $I^{\pi_z}(H)$ ,  $I^{\sigma_y}(H)$  требуются лишь коэффициенты  $b_0$  и  $b_2$  разложения матрицы плотности  $\mathcal{G}_b(\Omega)$  в ряд Фурье (3.9). Эта процедура в свою очередь сводится к вычислению некоторого коэффициента  $R_0$ , определяемого как  $R_0 = b_2/b_0$ . Последовательность алгоритмов следующая. Вначале, задавшись номером  $p$ , предполагая, что все коэффициенты  $R_n$  для которых  $n \geq p$  обращаются в нуль, по рекуррентной формуле (3.13) вычисляется  $R_1^{(p)}$  (напомним, что  $R_n = -b_{2n+2}/b_{2n}$ , если  $n \geq 1$ ). Расчет  $R_1^{(p)}$  идет в подпрограмме *SUBROUTINE UV*. Все вычисления проводятся в области действительных чисел, полагая  $R_n = UN + VN \cdot i$ , а также  $Z_n = XN + YN \cdot i$ , см. (3.10), где  $N = 0, 1, 2, \dots$ , а  $UN, VN, XN, YN$  - действительные числа.

Переход от  $R_1$  к  $R_0$ , то есть от  $U1, V1$  к  $U0, V0$  осу-

осуществляется в подпрограммах *FUNCTION FP* и *FUNCTION FS*, в которых затем по (3.12) вычисляется  $b_0^{(p)} = b_0$  и подынтегральные функции *FP* и *FS*, входящие в (3.14), (3.15). Переход к интегралам  $I^{\pi_z} \equiv FPINT$  и  $I^{\sigma_y} \equiv FSINT$ , а также к степени поляризации  $P \equiv POL$  осуществляется в основной программе; интегрирование ведется по методу Гаусса (стандартная программа *UNTI*). В основной программе задаются необходимые константы  $A, g_a, g_b$  и проводятся циклы по значениям магнитного поля, константы релаксации в основном состоянии  $\gamma$ , параметра оптической накачки  $\chi$ . Сюда же при необходимости включалась процедура минимизации по двум переменным  $\gamma, \chi$  методом наименьших квадратов отклонений измеренных и рассчитанных значений степени поляризации. Связь между обозначениями § 3.2 и символами программы (за исключением уже упомянутых в тексте) поясняется таблицей (табл. П.4.1).

Программа составлена на языке Фортран IV для работы в операционной системе *DOC/EC* на ЭВМ типа EC-1020 (или EC-1022).

Табл. П.4.1

§ 3.2	программа
$H$	$H$
$g_a \mu_N$	$RMA$
$g_b \mu_0$	$RMB$
$\omega_a$	$RMA * H$
$\omega_b$	$RMB * H$
$\gamma$	$AL$
$A$	$A$
$\cos \vartheta$	$T$
$\chi^{-1}$	$G2$
$P$	$IN$
$b_0$	$B0$

## Основная программа

```

C      ПРОГРАММА РАСЧЕТА P(H) К РИС.3.8.
      EXTERNAL FS,FP
      COMMON /A/ H,T,AL,IP
      COMMON /B/ G2,A,RMA,RMB
      COMMON /C/ X1,Y1

C      ВВОД И ОРГАНИЗАЦИЯ ДАННЫХ
      DIMENSION NH(50),GG(50),ALL(50),YY(20)
      A=8.62E7
      RMA=104
      RMB=1281
      9  FORMAT(I1)
      12 FORMAT(5X,2HA#,E10.5,5H RMA#,E10.4,5H RMB#,E10.4,4H IP=,I1)
      20 FORMAT(I2)
      30 FORMAT(14F5.0/7F5.0)
      40 FORMAT(16F5.4)
      80 FORMAT(20F4.2)
      160 FORMAT(I2)
      170 FORMAT(16F5.4)
      READ(1,9) IP
      READ(1,160) NA
      READ(1,170) (ALL(K),K=1,NA)
      READ(1,160) NG
      READ(1,80) (GG(L),L=1,NG)
      READ(1,20) NH
      READ(1,30) (HH(I),I=1,NH)
      PRINT 12,A,RMA,RMB,IP
      DO 100 I=1,NA
      AL=ALL(I)
      PRINT 1000,AL
      DO 90 K=1,NG
      G2=GG(K)
      PRINT 900,G2
      DO 200 J=1,NH
      H=HH(J)
      X1=(A/AL+4.0*RMA*RMB*H**2/AL**2)/(1.0+4.0*(RMA*H/AL)**2)
      Y1=2.0*(RMB*H/AL-A*RMA*H/AL**2)/(1.0+4.0*(RMA*H/AL)**2)

C      РАСЧЕТ И ПЕЧАТЬ ИНТЕНСИВНОСТИ И СТЕПЕНИ ПОЛЯРИЗАЦИИ
C      ИНТЕГРИРОВАНИЕ ПО T С ОБРАЩЕНИЕМ К ПРОГРАММЕ UNTI (МЕТОД ГАУССА)
      FPINT=UNTI(0.0,1.0,0.001,FP,0.0)
      FSINT=UNTI(0.0,1.0,0.001,FS,0.0)
      POL=(FPINT-FSINT)/(FPINT+FSINT)
      PRINT 2000,H,POL,FSINT,FPINT
      2000 FORMAT(1X,2HH#,F6.0,4HPOL=,F15.9,6HFSINT=,F15.9,6HFPINT=,F15.0)
      200 CONTINUE
      90 CONTINUE
      100 CONTINUE
      900 FORMAT(40X,5HG2 = ,F4.2)
      1000 FORMAT(40X,5HAL = ,E10.5)
      STOP
      END

```

Подпрограмма типа *SUBROUTINE*

```

SUBROUTINE UV(U,V,XPR,YPR)
  РАСЧЕТ КОЭФФИЦИЕНТА R1(U1,V1)
  COMMON /A/ H,T,AL,IP
  COMMON /B/ G2,A,RMA,RMB
  FU(XPO,YPO,E,F)=(E*(1.0+XPO)+F*YPO)/(E**2+F**2)
  FV(XPO,YPO,E,F)=(E*YPO-F*(1.0+XPO))/(E**2+F**2)
  FE(XPR,YPR,XT,U,V)=4.0*G2/AL*A/(1.0-T**2)-U*(1.0+XPR)+V*YPR+2.0*(
/ 1.0+XT)
  FF(XPR,YPR,YT,U,V,RN)=8.0*RN*G2/AL*RMB*H/(1.0-T**2)-V*(1.0+XPR)-U*
/ YPR+2.0*YT
  XN(RN)=(A/AL+4.0*RMA*RMB*RN**2+H**2/AL**2)/(1.0+4.0*RMA**2*H**2/AL
/ **2*RN**2)
  YN(RN)=2.0*RN*(RMB*H/AL-A*RMA*H/AL**2)/(1.0+4.0*(RN*RMA*H/AL)**2)
  RN1=F_DAT(IP)
  RN2=F_DAT(IP+1)
  U=0
  V=0
  XPR=XN(RN2)
  YPR=YN(RN2)
  XT=XN(RN1)
  YT=YN(RN1)
  E=FE(XPR,YPR,XT,U,V)
  F=FF(XPR,YPR,YT,U,V,RN1)
  IN=IP-1
11 DO 1 I=1,IN
  RN=FLDAT(IP-I)
  XPO=XN(RN)
  YPO=YN(RN)
  U=FU(XPO,YPO,E,F)
  V=FV(XPO,YPO,E,F)
  XPR=XT
  YPR=YT
  XT=XPO
  YT=YPO
  E=FE(XPR,YPR,XT,U,V)
  F=FF(XPR,YPR,YT,U,V,RN)
1 CONTINUE
  RETURN
  END

```



Подпрограммы типа *FUNCTION*

```

FUNCTION FS(C,T)
  PACKEI R0(U0,V0),B0,FP
  COMMON /A/ H,T1,AL,IP
  COMMON /B/ G2,A,RMA,RMB
  COMMON /C/ X1,Y1
  T1=T
  CALL JV(U,V,XPR,YPR)
  R01=V+YPR-U*(1.0+XPR)
  R02=-V*(1.0+XPR)-U*YPR
  S=0.5*AL/G2*(1.0-T**2)
  DET=((R01+(1.0+X1))*S+2.0*A)*((R01+2.0*(1.0+X1))*S+2.0*A)+((R02+2.
/0*Y1)*S+4.0*RMB*H)*((R02+Y1)*S+4.0*RMB*H)
  U0=A*((R01+2.0*(1.0+X1))*S+2.0*A)/DET
  V0=-A*((R02+2.0*Y1)*S+4.0*RMB*H)/DET
  B0=1.0/(2.0*G2*A/AL/(1.0-T**2)+1.0+A/AL+U0*(1.0+X1)-V0*Y1)
  FS=2.0*3.1416*B0*(1.0-T**2)*(1.0-U0)
  RETURN
END

```

```

FUNCTION FP(C,T)
  PACKEI R0(U0,V0),B0,FS
  COMMON /A/ H,T1,AL,IP
  COMMON /B/ G2,A,RMA,RMB
  COMMON /C/ X1,Y1
  T1=T
  CALL JV(U,V,XPR,YPR)
  R01=V+YPR-U*(1.0+XPR)
  R02=-V*(1.0+XPR)-U*YPR
  S=0.5*AL/G2*(1.0-T**2)
  DET=((R01+(1.0+X1))*S+2.0*A)*((R01+2.0*(1.0+X1))*S+2.0*A)+((R02+2.
/0*Y1)*S+4.0*RMB*H)*((R02+Y1)*S+4.0*RMB*H)
  U0=A*((R01+2.0*(1.0+X1))*S+2.0*A)/DET
  V0=-A*((R02+2.0*Y1)*S+4.0*RMB*H)/DET
  B0=1.0/(2.0*G2*A/AL/(1.0-T**2)+1.0+A/AL+U0*(1.0+X1)-V0*Y1)
  FP=4.0*3.1416*T**2*B0
  RETURN
END

```