

ФИЗИКА АТОМНОГО ЯДРА И СПЕКТРОСКОПИЯ АТОМОВ И МОЛЕКУЛ

УДК 539.184.28

М. П. Аузиньш

НЕЛИНЕЙНЫЙ ПАРАМЕТРИЧЕСКИЙ И РЕЛАКСАЦИОННЫЙ РЕЗОНАНС КВАНТОВЫХ БИЕНИЙ

Латвийский государственный университет

Одним из развивающихся методов субдоплеровской лазерной спектроскопии является метод квантовых биений [1, 2]. В этом методе субдоплеровское разрешение достигается когерентным возбуждением невырожденных состояний атомов или молекул и в экспериментах могут быть использованы источники света с широкой спектральной полосой, в том числе лазеры, работающие в многомодовом режиме генерации.

Наиболее наглядно квантовые биения могут быть зарегистрированы в кинетике затухания флуоресценции после импульсного возбуждения. Однако в этом случае требуется регистрирующая аппаратура с высоким временным разрешением. По этой причине ранее были обнаружены косвенные проявления квантовых биений — резонанс квантовых биений [3]. При резонансе квантовых биений наблюдается увеличение амплитуды модуляции флуоресценции при совпадении частоты расщепления когерентно возбуждаемых уровней частицы с частотой модуляции какого-либо из параметров возбуждающего света (амплитуда либо фаза) или параметра возбуждаемых частиц (энергетического расщепления уровней либо энергетической ширины уровня). В зависимости от того, какой параметр модулируется, различают резонанс квантовых биений, фазовый резонанс биений, параметрический резонанс биений и релаксационный резонанс биений (см. [4] и цитированную там литературу).

Более сложным проявлением квантовых биений являются нелинейные квантовые биения. При помощи их во флуоресценции могут проявляться сигналы, связанные с созданием когерентности на основном состоянии поглощающего перехода. В этом случае сильная световая волна создает когерентность на нижнем уровне. Эта же волна переносит когерентность на возбужденный уровень. Таким образом когерентность основного состояния проявляется во флуоресценции. К сожалению, сигналы нелинейных квантовых биений, как правило, испытывают связанные с нелинейностью сдвиги положений резонансов. Это затрудняет интерпретацию полученных сигналов. Однако проведение анализа ожидаемых сдвигов резонанса важно по той причине, что, например, для двухатомных молекул резонанс квантовых биений является одной из немногих методик, позволяющих определить значение фактора Ланде выбранного колебательно-вращательного (КВ) уровня основного электронного состояния [5, 6]. Это тем более важно, так как теоретический расчет этих величин представляет значительные трудности.

В настоящей работе проведен анализ возникающих сдвигов положения резонанса для нелинейного и релаксационного резонанса квантовых биений. Расчет проведен в аппарате поляризационных моментов (ПМ) для молекулярных состояний с большим значением углового момента J . Будем рассматривать следующую модель. Цикл поглощение—излучение является незамкнутым [7], т. е. начальное и конечное со-

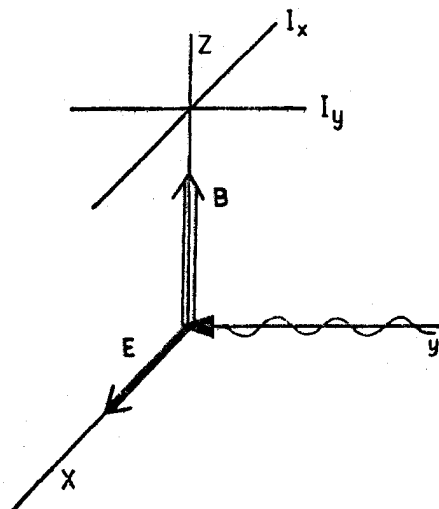


Рис. Геометрия расчета нелинейных сигналов параметрического и релаксационного резонансов квантовых биений

стояния цикла отличаются. Скорость поглощения $\Gamma_p \ll \gamma_k$, где γ_k — скорость релаксации ПМ φ_q^k основного состояния. В то же время $\Gamma_p \ll \Gamma_k$, где Γ_k — скорость релаксации ПМ f_q^k возбужденного состояния. Соответствие сделанных предположений ситуации в реальных молекулах обсуждено в [8]. Предположим, что квантовые биения наблюдаются между магнитными подуровнями КВ уровня основного

состояния молекул. Тогда в выбранной модели ПМ основного уровня определяет уравнение [9]

$$\dot{\varphi}_q^k = -\Gamma_p \sum_{xk'} {}^*A^{xk'} \{ \Phi^{(x)} \otimes \varphi^{(k')} \}_q^k - (\gamma_k - iq\omega) \varphi_q^k + \lambda_q^k \delta_{k0} \delta_{q0}. \quad (1)$$

Здесь ω — частота зеемановского расщепления соседних магнитных подуровней КВ уровня основного состояния, λ_q^k — скорость изотропной релаксации при столкновениях с незатронутыми оптическим возбуждением молекулами. Константа

$${}^*A^{xk'} = (-1)^\Delta \sqrt{\frac{(2X+1)(2k'+1)}{2k+1}} C_{1\Delta 1-\Delta}^{x0} C_{x0k0}^{k'0}, \quad (2)$$

где $\Delta = J' - J''$ — разность вращательных квантовых чисел возбужденного и основного состояний, а $C_{\alpha\alpha\beta\beta}^{\gamma\gamma}$ — коэффициент Клебша—Гордана. Тензор Φ_{ϵ}^x [10] характеризует поляризацию возбуждающего света. Предположим, что возбуждение ведется линейно поляризационным вдоль x оси светом, внешнее магнитное поле направлено вдоль z оси (см. рис.). В этом случае отличные от нуля компоненты Φ_{ϵ}^x равны

$$\Phi_0^0 = -\frac{1}{\sqrt{3}}, \quad \Phi_0^2 = -\frac{1}{\sqrt{30}}, \quad \Phi_{\pm 2}^2 = \frac{1}{2\sqrt{5}}. \quad (3)$$

При возникновении параметрического резонанса гармонически модулируется магнитное расщепление $\omega = \omega_0 + \omega_1 \sin \omega_M t$. При релаксационном резонансе скорость релаксации ПМ φ_q^k модулируется как $\gamma_k = \gamma_{k0}(1 + \mu_k \sin \omega_M t)$, где μ_k — безразмерный параметр.

При регистрации резонансов будем предполагать детектирование проинтегрированной по времени интенсивности флуоресценции. В этом случае нас интересует среднее значение ПМ φ_q^k при Q типе ($\Delta = 0$) и при R, P ($\Delta = \pm 1$) типах поглощения. Решая (1) в первом приближении по параметру Γ_p/γ_k , получаем в случае модуляции ω

$$\begin{aligned} \overline{\varphi_0^0}(Q) = \overline{\varphi_0^0}(P, R) &= 1 - \frac{1}{3} \frac{\Gamma_p}{\gamma_0}, \\ \overline{\varphi_0^2}(Q) = -2\overline{\varphi_0^2}(P, R) &= \frac{1}{15} \frac{\Gamma_p}{\gamma_2} \end{aligned} \quad (4)$$

$$\begin{aligned} \overline{\varphi_{\pm 2}^2}(Q) &= -2\overline{\varphi_{\pm 2}^2}(P, R) = \\ &= -\frac{1}{5\sqrt{6}} \Gamma_p \sum_{n=-\infty}^{\infty} (-1)^n J_n^2 \left(2 \frac{\omega_-}{\omega_M} \right) \frac{\gamma_2 \pm i(2\omega_0 - n\omega_M)}{\gamma_2^2 + (2\omega_0 - n\omega_M)^2} \end{aligned}$$

и в случае модуляции γ_k

$$\overline{\varphi_0^0}(Q) = \overline{\varphi_0^0}(P, R) = 1 - \frac{\Gamma_p}{3} \sum_{n=-\infty}^{\infty} (-1)^n I_n^2 \left(\frac{\mu_0 \gamma_0}{\omega_M} \right) \frac{1}{\gamma_0 + i n \omega_M}, \quad (5)$$

$$\overline{\varphi_0^2}(Q) = -2\overline{\varphi_0^2}(P, R) = \frac{\Gamma_p}{15} \sum_{n=-\infty}^{\infty} (-1)^n I_n^2 \left(\frac{\mu_2 \gamma_2}{\omega_M} \right) \frac{1}{\gamma_2 + i n \omega_M},$$

$$\begin{aligned} \overline{\varphi_{\pm 2}^2}(Q) &= -2\overline{\varphi_{\pm 2}^2}(P, R) = \\ &= -\frac{\Gamma_p}{5\sqrt{6}} \sum_{n=-\infty}^{\infty} (-1)^n I_n^2 \left(\frac{\mu_2 \gamma_2}{\omega_M} \right) \frac{1}{\gamma_2 \pm i(n\omega_M - 2\omega)}. \end{aligned}$$

Здесь $J_n(\alpha)$, $I_n(\alpha)$ — функция Бесселя первого рода и модифицированная функция Бесселя первого рода.

Возбуждающим светом ПМ φ_q^k связываются с ПМ возбужденного состояния f_q^k [9]

$$f_q^k = \frac{\Gamma_p}{\Gamma_k - iQ\Omega} \sum_{X_k} K A^{X_k} \{ \Phi^{(X)} \otimes \overline{\varphi}^{(k)} \}_q^k. \quad (6)$$

В (6) Ω — частота магнитного расщепления верхнего уровня. ПМ f_q^k прямо определяют интенсивность флуоресценции с выбранной поляризацией e' [9]

$$I \sim (-1)^{\Delta'} \sum_K \sqrt{2K+1} C_{1-\Delta'1\Delta'}^{K0} \sum_Q (-1)^Q \overline{f}_Q^K \Phi_{-Q}^K(e'), \quad (7)$$

где $\Delta' = J' - J''_1$ — разница квантовых чисел начального и конечного вращательного уровня в излучательном переходе. Тензор Φ_Q^K рассчитывается для поляризации регистрируемой флуоресценции.

В случае регистрации усредненных по времени сигналов для выявления резонансов наиболее удобной является величина $I_x - I_y$. Для параметрического резонанса, в этом случае используя (4), (6), (7), получаем для QQ цикла поглощения—испускания

$$\begin{aligned} I_x - I_y &\sim \text{Re} \overline{f}_2^2(Q), \\ \overline{f}_2^2(Q) &= \frac{\Gamma_p (\Gamma_2 + i2\Omega)}{\Gamma_2^2 + 4\Omega^2} \cdot \frac{1}{5\sqrt{6}} \left(1 - \frac{1}{3} \frac{\Gamma_p}{\gamma_0} - \frac{2}{21} \frac{\Gamma_p}{\gamma_2} - \right. \\ &\quad \left. - \frac{3}{7} \Gamma_p \sum_{n=-\infty}^{\infty} (-1)^n J_n^2 \left(2 \frac{\omega_-}{\omega_M} \right) \frac{\gamma_2 + i(2\omega - n\omega_M)}{\gamma_2^2 + (2\omega - n\omega_M)^2} \right), \quad (8) \end{aligned}$$

для P или R поглощения и P или R испускания

$$\begin{aligned} I_x - I_y &\sim -\text{Re} \overline{f}_2^2(P, R), \\ \overline{f}_2^2(P, R) &= \frac{\Gamma_p (\Gamma_2 + i2\Omega)}{\Gamma_2^2 + 4\Omega^2} \cdot \frac{1}{5\sqrt{6}} \left(-\frac{1}{2} + \frac{1}{6} \frac{\Gamma_p}{\gamma_0} - \frac{1}{42} \frac{\Gamma_p}{\gamma_2} + \right. \end{aligned}$$

$$+\frac{1}{7}\Gamma_p \sum_{n=-\infty}^{\infty} (-1)^n J_n^2 \left(2 \frac{\omega_-}{\omega_M} \right) \frac{\gamma_2 + i(2\omega_0 - n\omega_M)}{\gamma_2^2 + (2\omega_0 - n\omega_M)^2}. \quad (9)$$

На основании формул (5)–(7), проводя аналогичный расчет для релаксационного резонанса, получаем для QQ цикла

$$I_x - I_y \sim \text{Re } \bar{f}_2^2(Q),$$

$$\begin{aligned} \bar{f}_2^2(Q) = & \frac{\Gamma_p(\Gamma_2 + i2\Omega)}{\Gamma_2^2 + 4\Omega^2} \frac{1}{5\sqrt{6}} \left[1 - \frac{3}{7}\Gamma_p \sum_{n=-\infty}^{\infty} (-1)^n J_n^2 \left(\frac{\mu\gamma}{\omega_M} \right) \times \right. \\ & \left. \times \left(\frac{\gamma - in\omega_M}{\gamma^2 + n^2\omega_M^2} + \frac{\gamma - i(n\omega_M - 2\omega)}{\gamma^2 + (n\omega_M - 2\omega)^2} \right) \right], \quad (10) \end{aligned}$$

а для PR, PP, RP, RR циклов

$$I_x - I_y \sim -\text{Re } \bar{f}_2^2(P, R),$$

$$\begin{aligned} \bar{f}_2^2(P, R) = & \frac{\Gamma_p(\Gamma_2 + 2i\Omega)}{\Gamma_2^2 + 4\Omega^2} \frac{1}{5\sqrt{6}} \left[-\frac{1}{2} + \frac{1}{7}\Gamma_p \sum_{n=-\infty}^{\infty} (-1)^n J_n^2 \left(\frac{\mu\gamma}{\omega_M} \right) \times \right. \\ & \left. \times \left(\frac{\gamma - in\omega_M}{\gamma^2 + n^2\omega_M^2} + \frac{\gamma - i(n\omega_M - 2\omega)}{\gamma^2 + (n\omega_M - 2\omega)^2} \right) \right]. \quad (11) \end{aligned}$$

В этих выражениях для краткости записи принято $\gamma_{20} = \gamma_{00} = \gamma$, $\mu_2 = \mu_0 = \mu$.

Анализ полученных выражений для резонансов показывает, что сигналы позволяют определить величину магнитного расщепления ω и, значит, фактор Ланде выбранного КВ уровня. Знак фактора Ланде эти кривые определить не позволяют, так как в выражениях (8)–(11) в сумме каждому положительному n соответствует симметричный отрицательный n .

В силу того что в сигнале накладываются ряд резонансов с частотами $\omega_M = \frac{2}{n}\omega$, каждый отдельный резонанс испытывает сдвиг, который должен учитываться при интерпретации результатов. Наконец, в резонансном сигнале имеются слагаемые, которые пропорциональны $\Omega\omega$ и $\Omega\omega_M$. Это приводит к дополнительному смещению положений резонансов. Тем не менее, как показывает опыт регистрации нелинейного резонанса биений на КВ уровнях основного состояния молекул, такие сдвиги могут успешно учитываться [6, 11]. Это позволяет заключить, что параметрический и релаксационный резонанс биений может быть успешно применен для исследования основного состояния двухатомных молекул.

Приведенные результаты получены для состояний с большим угловым моментом J'' . Они могут быть перенесены на состояние с произвольным J'' . Для этого необходимо изменить формулы (2) и (6) [5]. Однако при этом все выводы относительно сдвигов положений резонансов останутся в силе, изменятся лишь численные коэффициенты в слагаемых формул (8)–(11).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Александров Е. Б. Оптические проявления интерференции вырожденных атомных состояний. — УФН. — 1972. — Т. 107. — С. 592–622.
2. Corney A., Series G. W. Theory of resonance fluorescence excited by modulated or pulsed light // Proc. Phys. Soc. — 1964. — Vol. 83. — P. 207–212.

3. Александров Е. Б. Квантовые биения резонансной люминесценции при возбуждении модулированным светом // *Опт. и спектр.* — 1963. — Т. 14. — С. 436—438.
4. Alexandrov E. B. Quantum beats // *Proceedings of 6 ICAP.* — Riga: Zinatne, 1979. — P. 521—534.
5. Ferber R. S., Okunevich A. I., Shmit O. A., Tamanis M. Ya. Lande factor measurements for the $^{130}\text{Te}_2$ electronic ground state // *Chem. Phys. Lett.* — 1982. — Vol. 90. — P. 476—480.
6. Аузиньш М. П., Насыров К. А., Таманис М. Я. и др. Резонанс квантовых биений в системе магнитных подуровней основного электронного состояния молекул // *ЖЭТФ.* — 1987. — Т. 92. — С. 1590—1600.
7. Теофилов П. П. Поляризованная люминесценция атомов, молекул и кристаллов. — М.: Физматгиз, 1959. — 288 с.
8. Фербер Р. С. Оптическая накачка и интерференция состояний в двухатомных молекулах // *Процессы переноса энергии в парах металлов.* — Рига: ЛГУ, 1983. — С. 3—27.
9. Аузиньш М. П. О решении уравнений движения поляризационных моментов для больших значений углового момента // *Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и техн. наук.* — 1984. — № 1. — С. 9—15.
10. Дьяконов М. И. К теории резонансного рассеяния света в газе при наличии магнитного поля // *ЖЭТФ.* — 1964. — Т. 47. — С. 2213—2221.
11. Аболтиньш А. Р., Фербер Р. С. Проявление эффекта резонанса биений основного состояния двухатомных молекул // *Процессы переноса энергии в парах металлов.* — Рига: ЛГУ, 1983. — С. 28—39.

NONLINEAR PARAMETRIC AND RELAXATIONAL RESONANCE OF QUANTUM BEATS

M. Auzin'sh

Summary

The paper presents a theoretical analysis of expected signals of nonlinear parametric and relaxational resonance of quantum beats for a chosen revibronic level of dimers in electronic ground state. It is shown that there exist shifts in resonance positions due to the both — the effect of excited state magnetism as well as to nonlinear light absorption.

Поступило 12.07.89