

02

©1992 г.

## ИЗМЕНЕНИЕ СПИНОВОГО И ОРБИТАЛЬНОГО СОСТОЯНИЯ ПРИ СТОЛКНОВЕНИЯХ ПОЛЯРИЗОВАННЫХ АТОМОВ $Mg(4^1P_1)$ С АТОМАМИ $He$

*А.Л.Загребин, С.И.Церковный*

Вычислены термы возбужденных состояний квазимолекулы  $Mg^*-He$ . Для медленных столкновений  $Mg(4^1P_1)+He$  рассмотрены неупругие переходы  $4^1P \rightarrow 4^3P$  с изменением спинового состояния и переходы  $4^1P \rightarrow 3^3D$  с одновременным изменением спинового и орбитального состояний. Вычислены температурные  $\langle\sigma(T)\rangle$  и энергетические  $\sigma(E)$  зависимости сечений переходов  $4^1P_1 \rightarrow 3^3D_1, 4^3P$  при столкновениях  $Mg(4^1P_1)+He$  в диапазоне температур  $150 \leq T \leq 1500$  К и энергий  $0.025 \leq E \leq 0.25$  эВ. Рассмотрены столкновения поляризованных атомов  $Mg(4^1P_1)$  с атомами  $He$  в пересекающихся пучках с лазерным возбуждением состояния  $Mg(4^1P_1)$  в зоне реакции. Установлено сильное влияние начальной поляризации атомов  $Mg(4^1P_1)$  на сечения переходов  $4^1P_1 \rightarrow 3^3D_1, 4^3P$ . В частности, для энергии столкновения  $E = 0.1$  эВ вариация поляризованных параметров приводит к изменению сечений более чем в десять раз.

### Введение

В последние годы в связи с развитием экспериментальной техники пересекающихся атомных пучков с лазерным возбуждением короткоживущих состояний в зоне реакции существенно возрос интерес к элементарным процессам с участием поляризованных атомов (см., например, [1-3]). Одним из наиболее популярных объектов для исследования поляризационных зависимостей сечений являются столкновения возбужденных атомов второй группы  $M(1P_1)$  с атомами инертных газов  $X(1S_0)$ , сопровождающиеся изменением спинового состояния. Экспериментальные данные получены для столкновений  $Ca(5^1P_1), Sr(6^1P_1)+X(1S_0)$  [1-6]. Теоретический анализ реакции изменения спинового состояния (переход  $1P \rightarrow 3P$ ) при столкновениях  $Ca(5^1P_1)+X(1S_0)$  выполнен в [7-10]. Неупругие переходы с сохранением спина ( $3^1P \rightarrow 3^1D$ ) при столкновениях поляризованных атомов  $Mg(4^1P)$  с атомами  $He$  рассмотрены в [11].

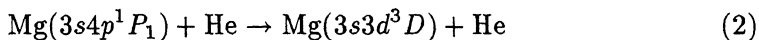
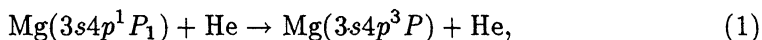
В данной работе на основании рассчитанных квазимолекулярных термов рассмотрены столкновения  $Mg(4^1P)+He$ . Наряду с поляризационной,

энергетической и температурной зависимостями сечения изменения спинового состояния (переход  $4^1P - 4^3P$ ) вычислены поляризационная, энергетическая и температурная зависимости сечения перехода  $4^1P - 3^3D$  с одновременным изменением спинового и орбитального состояний.

### Термы квазимолекулы $Mg^* + He$

Синглетные термы квазимолекулы  $Mg(3snl) + He$  вычислены в [11] в рамках метода псевдопотенциала. В данной работе выполнен аналогичный многоконфигурационный расчет триплетных термов (слабое спин-орбитальное взаимодействие в атоме  $Mg^*$  не учитывалось).

Расчет квазимолекулярных термов выполнен в диабатическом базисе волновых функций типа связи  $a|\Lambda_{\Omega}^d(n^3L)\rangle$ , построенных из произведений радиальной и спиновой волновых функций атома  $Mg(n^3L)$  и функции атома  $He$  (здесь  $M_L$  и  $\tilde{\Omega}$  — проекции орбитального  $L$  и полного  $J$  электронных угловых моментов атома  $Mg^*$  на межъядерную ось,  $\Lambda = |M_L|$ ,  $\Omega = |\tilde{\Omega}|$ , верхний индекс  $d$  указывает на диабатичность базиса, квантовые числа в скобках  $n^3L$  указывают на диабатическую корреляцию с состоянием  $Mg(n^3L) + He$  разъединенных атомов). При расчете матричных элементов межатомного взаимодействия использовался метод псевдопотенциала [12,13] в формулировке [14,15]. Атомные волновые функции возбужденного  $nl$ -электрона атома  $Mg^*$  вычислялись в кулоновском приближении эффективного орбитального квантового числа [16]. Для матричного элемента ион-атомного взаимодействия использовался потенциал взаимодействия  $Mg^+ + He$  [17]. При расчете учитывалось взаимодействие триплетных конфигураций  $Mg(3snl) + He$  с  $nl = 3p, 4s, 4p, 3d, 5s, 4d, 5p, 4f, 6s, 5d, 6p, 5f$ . Триплетные квазимолекулярные термы получены диагонализацией матрицы эффективного гамильтониана (без учета спин-орбитального взаимодействия). На рис. 1 приводятся нижние вычисленные термы симметрии  $^3\Sigma^+$  вместе с термами симметрии  $^1\Sigma^+$  из [11]. Термы симметрии  $^1,^3\Pi$  и  $^1,^3\Delta$  не пересекаются между собой (в масштабе рис. 1 эти термы являются горизонтальными в области  $R \gtrsim 5a_0$  и соответствуют отталкиванию при  $R < 5a_0$ ). Существенные для анализа рассмотренных ниже процессов изменения спинового состояния



квазимолекулярные термы приводятся на рис. 2.

### Неадиабатические переходы при столкновениях неполяризованных атомов

Заселение атомных термов  $4^3P$  и  $3^3D$  в реакциях (1), (2) возможно двумя путями. Первый путь связан с непосредственным пересечением термов начального  $^1\Pi_1(4^1P)$  и конечного  $^3\Sigma_1(3^3D)$  состояний (рис. 2). Второй путь связан с пересечением термов начального  $^1\Sigma_0+(4^1P)$  и конечных  $^3\Pi_0+(3^3D, 4^3P)$  состояний с промежуточным термом  $^1\Sigma_0+(3^1D)$  (рис. 2).

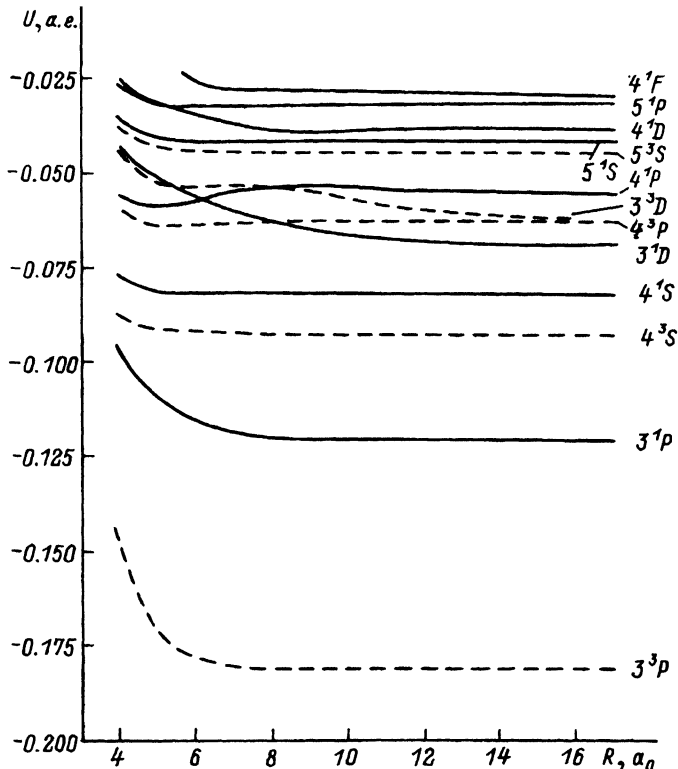


Рис. 1. Термы квазимолекулы  $\text{Mg}^+\text{-He}$ .

Сплошные кривые — состояния  $^1\Sigma^+$ , штриховые — состояния  $^3\Sigma^+$ . В правой части рисунка указана корреляция с состояниями  $\text{Mg}(3snln^{1,3}L)\text{-He}$  разъединенных атомов. Энергия отсчитывается от состояния  $\text{Mg}^+\text{-He}$  при  $R \rightarrow \infty$ .

Рассмотрим первый наиболее эффективный механизм. В этом случае реакции (1), (2) обусловлены квазипересечением термов  $^1\Pi_1(4^1P)$  и  $^3\Sigma_1^+(3^3D)$  при межъядерном расстоянии  $R_0 = 9.7a_0$  (на рис. 2 эти термы пересекаются, так как приводится результат расчета термов без учета спин-орбитального взаимодействия). Соответствующий неадиабатический переход может быть описан в рамках модели Ландау-Зинера. Величина среднего терма в области квазипересечения  $U_0 = -1.1 \cdot 10^{-4}$  а.е. отсчитана от исходного состояния реакций (1), (2) при  $R \rightarrow \infty$ . Разность наклонов пересекающихся термов  $|\Delta F_0| = 1.7 \cdot 10^{-3}$  а.е. Квазипересечение термов  $^1\Pi_1(4^1P)$  и  $^3\Sigma_1^+(3^3D)$  определяет суммарное заселение состояний  $4^3P$  и  $3^3D$  при столкновениях  $\text{Mg}(4^1P_1)+\text{He}$ . Состояние  $4^3P$  заселяется в результате неадиабатического перехода  $^3\Sigma^+(3^3D) \rightarrow ^3\Sigma^+(4^3P)$  при разлете атомов. Поэтому первоначально рассмотрим вопрос о суммарном сечении реакций (1), (2).

Связь квазипересекающихся состояний  $^1\Pi_1(4^1P)$  и  $^3\Sigma_1^+(3^3D)$  обусловлена как межатомным, так и спин-орбитальными взаимодействиями. Межатомное взаимодействие перемешивает диабатические квазимолеку-

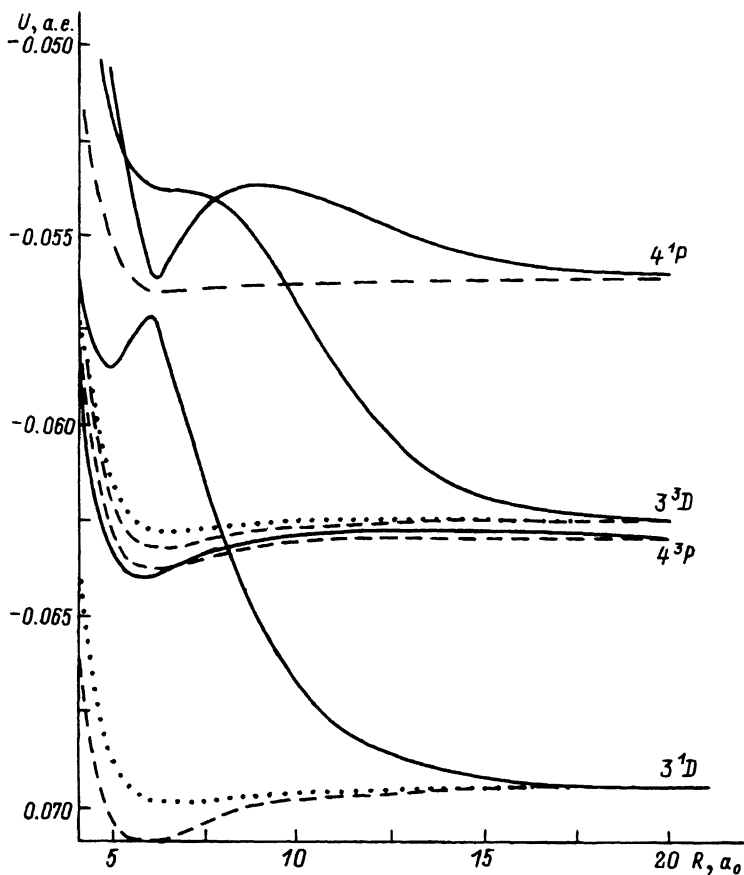


Рис. 2. Термы квазимолекулы  $\text{Mg}^+\text{-He}$ , определяющие процессы (1), (2).

Сплошные кривые — состояния  $^1\Sigma^+$  и  $^3\Sigma^+$ , штриховые — состояния  $^1\Pi$  и  $^3\Pi$ , пунктир — состояния  $^1\Delta$  и  $^3\Delta$ . В правой части рисунка указана корреляция с состояниями  $\text{Mg}(3snln^{1,3}L)\text{-He}$  разьединенных атомов. Энергия отсчитывается от состояния  $\text{Mg}^+\text{-He}$  при  $R \rightarrow \infty$ .

лярные волновые функции  $|\Sigma_{\Omega}^d(n^3L)\rangle$  типа связи а с разными значениями  $n$ ,  $L$  и одинаковыми другими квантовыми числами. При межъядерном расстоянии  $R_0$  адиабатическая квазимолекулярная функция типа связи  $a|\Sigma_1^{ad}(3^3D)\rangle$  (квантовые числа в скобках указывают на адиабатическую корреляцию с состоянием  $\text{Mg}(3^3D)+\text{He}$  разьединенных атомов), вычисленная без учета спин-орбитального взаимодействия, содержит диабатическую функцию  $|\Sigma_1^d(4^3P)\rangle$  с амплитудой  $b_0(R_0) = 0.59$  (это значение получено при диагонализации матрицы эффективного гамильтониана квазимолекулы в диабатическом базисе). В области квазипересечения термов вблизи  $R_0$  амплитуда  $b_0$  достаточно слабо зависит от межъядерного расстояния  $R$ . Переমেশивание диабатических волновых функций  $\Pi$ -состояний в области  $R \gtrsim R_0$  незначительно.

Спин-орбитальное взаимодействие  $V_{s0}$  связывает атомные состояния  $LS$ -типа связи  ${}^3P_1$  и  ${}^1P_1$

$$\langle 4^1P_1 M_J | \hat{V}_{s0} | 4^3P_1 M_J \rangle = \sqrt{2} \xi, \quad (3)$$

а также диабатические квазимолекулярные состояния типа связи  $a$  [10]

$$\langle {}^1\Pi_1^d(4^1P) | \hat{V}_{s0} | {}^3\Sigma_1^d(4^3P) \rangle = \xi. \quad (4)$$

Здесь  $\xi = 1.52 \cdot 10^{-5}$  а.е. — константа спин-орбитального взаимодействия для атома  $\text{Mg}(3s4p)$ . Принято значение  $\xi = 1/3 \Delta \varepsilon_{02}$ , где  $\Delta \varepsilon_{02}$  — расщепление между атомными уровнями  $4^3P_0$  и  $4^3P_2$ .

Для матричного элемента оператора  $\tilde{V}_{s0}$  в адиабатическом базисе  $|2s+1 \Lambda_{\Omega}^{ad}(n^{2s+1}L)\rangle$ , не учитывающем спин-орбитальное взаимодействие, получаем

$$a_0 = \langle {}^1\Pi_1^{ad}(4^1P) | \hat{V}_{s0} | {}^3\Sigma_1^{ad}(3^3D) \rangle = b_0(R_0) \xi, \quad (5)$$

$a_0 = 9.0 \cdot 10^{-6}$  а.е.

Таким образом, неадиабатический переход  ${}^1\Pi_1(4^1P) \rightarrow {}^3\Sigma_1(3^3D)$  может быть описан в рамках модели Ландау-Зинера с приведенными выше параметрами  $R_0$ ,  $U_0$ ,  $\Delta F_0$ ,  $a_0$ . Вероятность неадиабатического прохождения области квазипересечения адиабатических термов (построенных с учетом спин-орбитального расщепления) есть [18]

$$p_0 = \exp(-\xi_0/\varepsilon^{1/2}), \quad (6)$$

где

$$\xi_0 = \frac{2\pi a_0^2}{|\Delta F_0|} \left(\frac{\mu}{2}\right)^{1/2}, \quad (7)$$

$\xi_0 = 1.7 \cdot 10^{-5}$  а.е. (для столкновений с изотопом  ${}^4\text{He}$ ),  $\varepsilon = E(1 - \rho^2/R_0^2 - U_0/E)^{1/2}$  — кинетическая энергия радиального относительного движения атомов в области квазипересечения,  $E$  — начальная относительная энергия атомов,  $\rho$  — параметр удара,  $\mu$  — приведенная масса.

Суммарная вероятность переходов (1), (2) при двухкратном прохождении области неадиабатичности

$$\tilde{P}_0 = 2p_0(1 - p_0). \quad (8)$$

При тепловых энергиях столкновения ( $0.01 \lesssim E \lesssim 0.01$  эВ,  $100 \lesssim T \lesssim 1000$  К) параметр Мессе  $\xi_0/\varepsilon^{1/2}$  для рассматриваемого перехода мал ( $\xi_0/E^{1/2} \ll 1$ ,  $\xi_0/(kT)^{1/2} \ll 1$ ). Поэтому для вероятности перехода  $p_0$  (6) справедлива формула теории возмущений

$$p_0 \approx 1 - \xi_0/\varepsilon^{1/2}, \quad \tilde{P}_0 \approx 2\xi_0/\varepsilon^{1/2}. \quad (9)$$

При тепловых энергиях величина  $|U_0| \ll E$ ,  $kT$ , поэтому эффект орбитирования несуществен. Таким образом, с учетом применимости формул

теории возмущений для суммарного сечения реакций (1), (2) при столкновениях неполяризованных атомов справедлива формула [19]

$$\bar{\sigma}(4^1P_1 \rightarrow 3^3D, 4^3P; E) = \frac{8}{3} \pi R_0^2 (\xi_0/E^{1/2}) (1 - U_0/E)^{1/2}. \quad (10)$$

Усредненное по максвелловскому распределению суммарное сечение  $\langle \sigma(4^1P_1 \rightarrow 3^3D, 4^3P, T) \rangle$  реакций (1), (2) представляется в виде [19]

$$\langle \sigma(4^1P_1 \rightarrow 3^3D, 4^3P; T) \rangle = \frac{4}{3} \pi R_0^2 \left( \frac{\pi \xi_0^2}{kT} \right)^{1/2} \exp\left(-\frac{U_0}{kT}\right), \quad (11)$$

где  $k$  — постоянная Больцмана.

Вычисленные температурная и энергетическая зависимости суммарного сечения реакций (1), (2) для неполяризованных атомов  $Mg^*$  при столкновениях с изотопом  $^4He$  приводятся на рис. 3. Как следует из формул (7), (10), (11), при условии  $|U_0| \ll E$  сечения  $\bar{\sigma}(E)$  и  $\langle \sigma(T) \rangle$  пропорциональны величине  $\mu^{1/2}$ , так что для столкновений с изотопом  $^3He$  сечения  $\bar{\sigma}(E)$  и  $\langle \sigma(T) \rangle$  меньше в 1.13 раз, чем для столкновений с изотопом  $^4He$ . Малость сечений связана со слабостью спин-орбитального взаимодействия в атоме  $Mg^*$ . Отметим, что с учетом применимости теории возмущений для модели Ландау-Зинера и малостью отношений  $|U_0|/E$  и  $|U_0|/kT$  сечения  $\bar{\sigma}(E)$  и  $\langle \sigma(T) \rangle$  связаны соотношением

$$\langle \sigma(\bar{v}) \rangle = \bar{\sigma}(v = \bar{v}), \quad (12)$$

$\bar{v} = (8kT/\pi\mu)^{1/2}$ , что позволяет сравнивать результаты эксперимента, выполненного в условиях газовой ячейки, с результатами пучкового эксперимента.

Обсудим вопрос о распределении созданной в результате рассмотренного выше неадиабатического перехода заселенности квазимолекулярного  $^3\Sigma_1(3^3D)$ -состояния по атомным термам  $3^3D$  и  $4^3P$ . Неадиабатический переход  $^3\Sigma^{ad}(3^3D) \rightarrow ^3\Sigma_1^{ad}(4^3P)$  при разлете атомов обусловлен расталкиванием в области  $R \simeq 16a_0$  (рис. 2) диабатических состояний  $^3\Sigma^d(3^3D)$  и  $^3\Sigma^d(4^3P)$  в результате межатомного взаимодействия. В области расталкивания недиагональный матричный элемент межатомного взаимодействия в исходном диабатическом квазимолекулярном базисе типа связи  $a$  определяется обменным взаимодействием атомов и имеет экспоненциальную зависимость от межъядерного расстояния. В этой же области разность диагональных матричных элементов гамильтониана квазимолекулы в диабатическом базисе практически постоянна и близка к расщеплению между атомными термами  $3^3D$  и  $4^3P$ . Таким образом, неадиабатический переход  $^3\Sigma(3^3D) \rightarrow ^3\Sigma(4^3P)$  при прохождении области расталкивания квазимолекулярных термов может быть описан в рамках экспоненциальной модели Демкова [18,20]. Центр области неадиабатичности  $R_\Sigma = 16.6a_0$  и параметры модели  $\Delta\epsilon_\Sigma = 4.4 \cdot 10^{-4}$  а.е.,  $\alpha_\Sigma = 0.44a_0^{-1}$  определены аппроксимацией вычисленных диабатических матричных элементов гамильтониана квазимолекулы гамильтонианом модели Демкова (в этой области можно ограничиться двухуровневым приближением, так

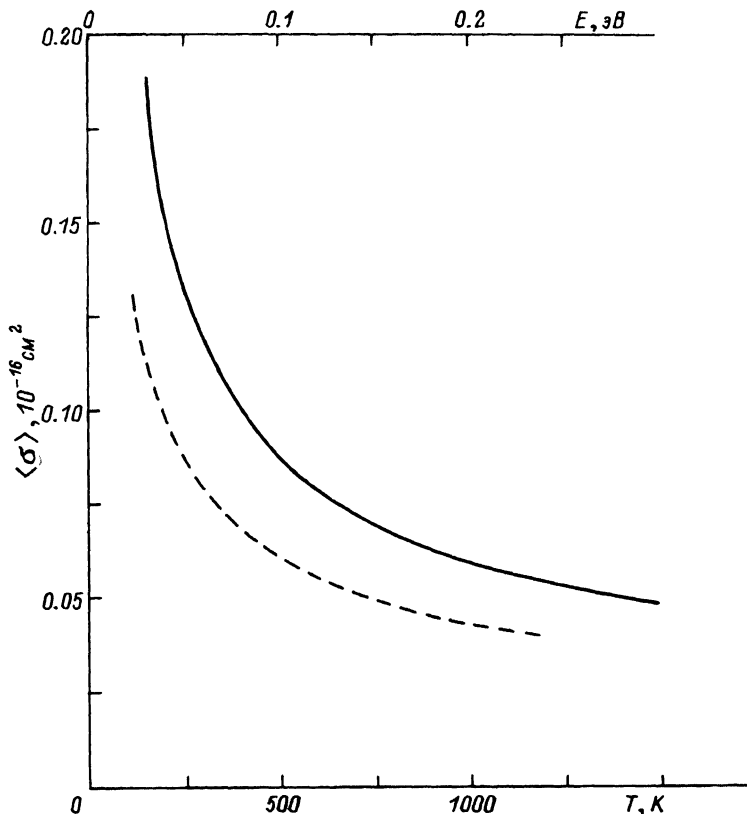


Рис. 3. Температурная  $\langle \sigma(T) \rangle$  (сплошная кривая) и энергетическая  $\sigma(E)$  (штриховая) зависимости суммарных сечений реакций (1) и (2) для столкновений с изотопами  $^4\text{He}$ .

При  $E \sim 0.025$  эВ и  $T \sim 300$  К атомные термы  $3^3D$  и  $4^3P$  заселяются в отношении 0.75:0.25, а при  $E \sim 0.25$  эВ и  $T \sim 1500$  К — в отношении 0.70:0.30.

как взаимодействие адиабатических состояний  $3^3\Sigma^d(4^3P)$  и  $3^3\Sigma^d(3^3D)$  и  $3^3\Sigma^d$ -состояниями других конфигураций несущественно). Вероятность перехода  $3^3\Sigma(3^3D) \rightarrow 3^3\Sigma(4^3P)$  при однократном прохождении области неадиабатичности [18,20]

$$\tilde{P}_2 = \frac{\exp(-\xi_\Sigma/\varepsilon^{1/2})}{1 + \exp(-\xi_\Sigma/\varepsilon^{1/2})}, \quad (13)$$

где  $\xi_\Sigma = (\pi \Delta \varepsilon_\Sigma / 2 \alpha_\Sigma) (\mu/2)^{1/2} = 0.088$  (для изотопа  $^4\text{He}$ ),  $\varepsilon$  — энергия радиального относительного движения атомов в центре области неадиабатичности.

Для реакции (1), (2) при  $E \lesssim 0.05$  эВ или  $T \lesssim 500$  К величина  $\varepsilon$  в (13) определяется разницей  $\Delta E = 6.4 \cdot 10^{-3}$  а.е. между энергией исходного атомного состояния  $4^1P_1$  и энергией  $\bar{U}(R_\Sigma)$  среднего терма модели Лемкова для перехода  $3^3\Sigma(3^3D) \rightarrow 3^3\Sigma(4^3P)$ . Подстановка  $\varepsilon = \Delta E$  в (13) дает  $\tilde{P}_2 = 0.25$ . При  $E = 0.2$  эВ ( $7.3 \cdot 10^{-3}$  а.е.) величина  $\tilde{P}_\Sigma \approx 0.3$ . Таким

образом, отношение заселенности атомных термов  $4^3P$  и  $3^3D$  в результате столкновений  $Mg(4^1P)+He$  медленно изменяется от 0.25:0.75 на нижней границе рассмотренного диапазона энергий столкновения ( $E < 0.057$  эВ,  $T < 500$  К) до 0.30:0.70 на верхней границе ( $E \simeq 0.2$  эВ,  $T \simeq 1500$  К). Для столкновений с изотопом  $^3He$  отношение заселенности изменяется от 0.30:0.70 до 0.35:0.65.

Рассмотренный выше механизм реакций (1), (2) определяется квази-пересечением термов  $^1\Pi_1(4^1P)$  и  $^3\Sigma_1^+(3^3D)$ . Другой возможный механизм реакций (1), (2) связан с переходом через промежуточный терм  $^1\Sigma_{0+}^+(3^1D)$ , пересекающий терм начального состояния  $^1\Sigma_{0+}^+(4^1P)$  и термы конечных состояний  $^3\Pi_{0+}(3^3D)$  и  $^3\Pi_{0+}(4^3P)$  (между термами конечных состояний возможны неадиабатические переходы при разлете атомов). Этот механизм приводит, главным образом, к заселению состояния  $4^3P$ .

Переход  $^1\Sigma_{0+}^+(4^1P) \rightarrow ^1\Sigma_{0+}^+(3^1D)$  рассмотрен в [11] и может быть описан в рамках модели Ландау-Зинера (необходимо также учесть потенциальный барьер на терме исходного состояния).

Состояния  $^1\Sigma_{0+}^+(3^1D)$  и  $^3\Pi_{0+}(3^3D)$  связаны спин-орбитальным взаимодействием. Вероятность перехода  $^1\Sigma_{0+}^+(3^1D) \rightarrow ^3\Pi_{0+}(3^3D)$  в области квазипересечения термов пренебрежимо мала (по сравнению с вероятностью перехода  $^1\Pi_1(4^1P) \rightarrow ^3\Sigma_1(3^3D)$ ) вследствие малости константы спин-орбитального взаимодействия для конфигурации  $Mg(3s3d)$ . Поэтому вклад перехода  $^1\Sigma_{0+}^+(4^1P) \rightarrow ^1\Sigma_{0+}^+(3^1D) \rightarrow ^3\Pi_{0+}(3^3D)$  в сечение реакции (2) мал по сравнению с вкладом перехода  $^1\Pi_1(4^1P) \rightarrow ^3\Sigma_1^+(3^3D)$ .

Взаимодействие состояний  $^1\Sigma_{0+}^+(3^1D)$  и  $^3\Pi_{0+}(4^3P)$  в области квази-пересечения при межъядерном расстоянии  $R_1 = 8.2a_0$  аналогично рассмотренному выше взаимодействию состояний  $^1\Pi_1(4^1P)$  и  $^3\Sigma_1^+(3^3D)$  и определяется перемешиванием диабатических волновых функций  $|^1\Sigma_{0+}^d(3^1D)\rangle$  и  $|^1\Sigma_{0+}^d(4^1P)\rangle$ , а также спин-орбитальной связью [10]

$$\langle ^1\Sigma_{0+}^d(4^1P) | \hat{V}_{s0} | ^3\Pi_{0+}^d(4^3P) \rangle = \sqrt{2} \xi. \quad (14)$$

При межъядерном расстоянии  $R_1$  адиабатическая квазимолекулярная волновая функция  $|^1\Sigma_{0+}^{dd}(3^1D)\rangle$  содержит диабатическую функцию  $|^1\Sigma_{0+}^d(4^1P)\rangle$  с амплитудой  $b_1(R_1) = 0.40$ . Перемешивание диабатических волновых функций  $\Pi$ -состояний в области  $R \gtrsim R_1$  незначительно. Таким образом, для матричного элемента спин-орбитального взаимодействия получаем

$$a_1 = \langle ^1\Sigma_{0+}^{ad}(3^1D) | \hat{V}_{s0} | ^3\Pi_{0+}^d(4^3P) \rangle = b_1(R_1) \sqrt{2} \xi \quad (15)$$

( $a_1 = 8.6 \cdot 10^{-6}$  а.е.) и переход  $^1\Sigma_{0+}^+(3^1D) \rightarrow ^3\Pi_{0+}(4^3P)$  может быть описан в рамках модели Ландау-Зинера с приведенными выше недиагональным матричным элементом  $a_1$  и разностью наклонов диабатических термов модели  $|\Delta F_1| = 2.7 \cdot 10^{-3}$  а.е. При тепловых ( $E \lesssim 0.1$  эВ,  $T \lesssim 1000$  К) столкновениях  $Mg(4^1P)+He$  энергия радиального относительного движения в области пересечения термов  $^1\Sigma(3^1D)$  и  $^3\Pi(4^3P)$  определяется разностью  $\Delta E_1 = 9.5 \cdot 10^{-3}$  а.е. между энергией максимума потенциального барьера

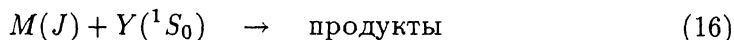


на терме  ${}^1\Sigma(4^1P)$  и энергией термов  ${}^1\Sigma(3^1D)$ ,  ${}^3\Pi(4^3P)$  в области пересечения. Поэтому вероятность  $\tilde{P}_1 = 8 \cdot 10^{-5}$  перехода  ${}^1\Sigma_{0+}(3^1D) \rightarrow {}^3\Pi_{0+}(4^3P)$  при разлете атомов практически не зависит от начальной энергии столкновения и параметра удара. Вклад рассматриваемого механизма с переходом через промежуточный терм  ${}^1\Sigma_{0+}(3^1D)$  в сечение реакций (1), (2) определяется произведением вероятности  $\tilde{P}_1$  и вычисленного в [11] сечения перехода  $4^1P \rightarrow 3^1D$ . При  $E \leq 0.25$  эВ этот вклад пренебрежимо мал и не превосходит величины  $10^{-3} \text{ \AA}^2$ .

### Неадиабатические переходы при столкновениях поляризованных атомов

Рассмотрим переходы (1), (2) при столкновениях в пересекающихся атомных пучках. Атомы  $\text{Mg}(4^1P)$  создаются в области пересечения атомных пучков возбуждением из основного состояния  $\text{Mg}(3s^2S_0)$  поляризованным излучением.

Полуклассический анализ влияния поляризации атомов  $M$  с полным электронным моментом  $J$  на сечения процессов типа



при произвольном  $J$  дан в [21]. Случай  $J = 1$  подробно рассмотрен в [7,9,10]. Результаты [7,9,10] справедливы, если при определяющих величину сечения реакции (16) параметрах удара  $\rho$  переходы из исходного квазимолекулярного состояния в конечное или промежуточное происходят при межъядерном расстоянии  $R < R_{ec}(E, \rho)$ , где  $R_{ec}$  — межъядерное расстояние, в окрестности которого в процессе столкновения происходит изменение типа связи  $e \rightarrow c$  [18]. Такая ситуация характерна для реакций (1), (2), как и для рассмотренных в [11] переходов  $4^1P \rightarrow 3^1D$ .

В [9] получены выражения для сечения  $\sigma$  реакции (16) при произвольной, в том числе неполной, поляризации атомов  $M(J = 1)$  через сечения  $\sigma^{(0)}$ ,  $\sigma^{(1)}$  ( $\sigma_\Sigma$  и  $\sigma_\pi$  в обозначениях [9]) для столкновений с нулевой и единичной проекциями момента  $\mathbf{J}$  на направление начальной относительной скорости, а также через параметры, характеризующие поляризацию атомов  $M(J = 1)$  или возбуждающие лазерное излучение.<sup>1</sup> Таким образом, задачей теоретического анализа процессов (1), (2) для поляризованных атомов является вычисление сечений  $\sigma^{(0)}$  и  $\sigma^{(1)}$ .

Для реакций (1), (2) исходным является квазимолекулярный терм  ${}^1\Pi_1$ . Для входного канала в области  $R \gtrsim R_{ec}$  справедливо приближение прямолинейного пролета [11]. В этом случае суммарные сечения  $\sigma^{(0)}$  и  $\sigma^{(1)}$

<sup>1</sup> В формуле (18) работы [9] имеется опечатка. Следует читать

$$\sigma_\perp = \frac{1}{2}(\sigma_\Sigma + \sigma_\pi) \sin^2 \beta + \sigma_\pi \cos^2 \beta.$$

для процессов (1), (2) при столкновениях поляризованных атомов представляются в виде [7,9,10]

$$\sigma^{(0)}(E) = 2\pi \int_0^{\rho_m} \tilde{F}_0 \frac{\rho^3}{R_{ec}^2(\rho)} d\rho, \quad (17)$$

$$\sigma^{(1)}(E) = 2\pi \int_0^{\rho_m} \tilde{F}_0 \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\rho^2}{R_{ec}^2}\right) \rho d\rho, \quad (18)$$

где  $\rho_m = R_0(1 - U_0/E)^{1/2}$  — максимальный параметр удара, при котором возможны реакции (1), (2); радиус изменения типа связи определяется условием [22]

$$\Delta U(R_{ec}) = 2v\rho/R_{ec}^2, \quad (19)$$

$v = (2E/\mu)^{1/2}$ ,  $\Delta U$  — расщепление между адиабатическими термами  $^1\Sigma(4^1P)$  и  $^1\Pi(4^1P)$ .

Сечение для неполяризованных атомов

$$\bar{\sigma} = 1/3\sigma^{(0)} + 2/3\sigma^{(1)} \quad (20)$$

совпадает с сечением (10).

При вариации параметров, характеризующих поляризацию атомов  $Mg(4^1P)$ , минимальное суммарное сечение реакций (1), (2) совпадает с величиной  $\sigma^{(0)}$ , а максимальное — с  $\sigma^{(1)}$ . Вычисленные сечения  $\sigma^{(0)}$ ,  $\sigma^{(1)}$ ,  $\bar{\sigma}$  и отношения

$$\eta = \sigma^{(0)}/\sigma^{(1)}, \quad (21)$$

характеризующие величину поляризационного эффекта для реакций (1), (2), приводятся в таблице. Относительное заселение термов  $3^3D$  и  $4^3P$  при столкновениях поляризованных атомов совпадает с установленным выше для неполяризованных атомов. Отметим, что неучтенные в (17), (18) переходы через промежуточный терм  $^1\Sigma(3^1D)$  могут незначительно увеличить сечение  $\sigma^{(0)}(4^3P)$  и уменьшить поляризационный эффект для реакции (2), т.е. увеличить отношения  $\eta$ . Использованное в работах [7,9,10] и формулах (17), (18) приближение внезапного изменения типа связи при межъядерном расстоянии  $R_{ec}$  также несколько завышает величину поляризационного эффекта (занижает отношение  $\eta$ ).

Для столкновений  $Mg(4^1P) + He$  изменение типа связи  $e \rightarrow c$  происходит в области обусловленного обменным взаимодействием отталкивания (для  $^1\Sigma$ -состояния), так что величина  $\Delta U$  быстро (экспоненциально) изменяется с межъядерным расстоянием, а корень уравнения (19) слабо (логарифмически) зависит от  $\rho$ . Поэтому для определяющих сечения процессов (1), (2) параметров удара значения  $R_{ec}(\rho)$  изменяются незначительно и зависимость  $R_{ec}(\rho)$  в (17), (18) может быть заменена некоторым средним значением  $\bar{R}_{ec}$ . В этом случае для сечений  $\sigma^{(0)}$  и  $\sigma^{(1)}$  справедливы приближенные выражения [7,9,10]

$$\sigma^{(0)} = x^2(\sigma_0 - \sigma_1), \quad (22)$$

Таблица. Суммарные сечения (в  $10^{-18}$  см<sup>2</sup>) реакций (1), (2) для неполяризованных ( $\bar{\sigma}$ ) и поляризованных ( $\sigma^{(0)}/\sigma^{(1)}$ ) атомов Mg( $4^1P$ ) при столкновениях с изотопом  $^4\text{He}$ , отношения  $\eta = \sigma^{(0)}/\sigma^{(1)}$ , эффективные значения параметра  $x$ , определенные по формуле (26), и  $\bar{R}_{ec} = xR_0$  (в а $\text{\AA}$ ) для различных энергий  $E$  в эВ

$E$	$\bar{\sigma}$	$\sigma^{(0)}$	$\sigma^{(1)}$	$\eta$	$x$	$\bar{R}_{ec}$
0.025	12.7	2.30	18.0	0.128	0.425	22.8
0.030	11.5	2.08	16.2	0.128	0.424	22.8
0.035	10.6	1.91	14.9	0.128	0.425	22.8
0.040	9.87	1.79	13.9	0.128	0.425	22.8
0.045	9.27	1.68	13.1	0.129	0.426	22.8
0.050	8.77	1.60	12.4	0.130	0.427	22.7
0.055	8.34	1.53	11.8	0.130	0.428	22.7
0.060	7.97	1.47	11.2	0.131	0.429	22.6
0.065	7.65	1.41	10.8	0.131	0.430	22.6
0.070	7.36	1.37	10.4	0.132	0.431	22.5
0.075	7.10	1.32	9.99	0.133	0.432	22.5
0.080	6.87	1.29	9.66	0.133	0.433	22.4
0.085	6.65	1.25	9.36	0.134	0.434	22.4
0.090	6.46	1.22	9.08	0.135	0.435	22.3
0.095	6.28	1.19	8.83	0.135	0.436	22.3
0.100	6.12	1.17	8.60	0.136	0.437	22.2
0.125	5.46	1.06	7.66	0.138	0.441	22.0
0.150	4.98	0.982	6.97	0.141	0.444	21.8
0.175	4.60	0.921	6.44	0.143	0.448	21.7
0.200	4.30	0.873	6.01	0.145	0.450	21.5
0.225	4.05	0.832	5.66	0.147	0.453	21.4
0.250	3.84	0.798	5.36	0.149	0.456	21.3

$$\sigma^{(1)} = \sigma_0 - \frac{1}{2}\sigma^{(0)}, \quad (23)$$

где  $x = R_0/R_{ec}$ , а величины  $\sigma_0$  и  $\sigma_1$  выражаются через неполные гамма-функции (см. Приложение работы [10]). Отметим, что  $\sigma_0 = 3/2\bar{\sigma}$ .

С учетом малости параметра Мессии для ландау-зинеровского перехода  $^1\Pi_1(4^1P) \rightarrow ^3\Sigma_1(3^3D)$  и справедливого для тепловых энергий  $E > > 0.01$  эВ условия  $|U_0| \ll E$ , для сечений  $\sigma_0$  и  $\sigma_1$  справедливы приближенные выражения [10]

$$\sigma_0 = 4\pi R_0^2 \xi_0 E^{-1/2}, \quad (24)$$

$$\sigma_1 = \sigma_0/3. \quad (25)$$

В приближении (22)–(25) отношение минимального (при вариации поляризационных параметров) и максимального сечений зависит только от параметра  $x = R_0/\bar{R}_{ec}$

$$\eta_x = \frac{2x^2}{3 - x^2}. \quad (26)$$

Сопоставление приведенных в таблице значений  $\eta$  с приближенным соотношением  $\eta_x$  (26) позволило определить значения эффективного радиуса изменения типа связи  $\bar{R}_{ec}$  при различных энергиях (см. таблицу). Медленное изменение величины  $\bar{R}_{ec}$  от  $22.8a_0$  при  $E = 0.025$  эВ до  $21.3a_0$  при  $E = 0.25$  эВ позволяет использовать для анализа процессов (1), (2) простые формулы (22)–(26) с  $\bar{R}_{ec} = 22a_0$  и  $x = 0.44$ . Отметим, что малость параметра  $x$  определяет сильную поляризационную зависимость сечений процессов (1), (2), для которых отношение минимального и максимального сечений  $\eta_x \approx (2/3)x^2 = 0.13$  мало и практически не зависит от энергии в тепловом диапазоне.

Экспериментально поляризационный эффект для реакций (1), (2) может наблюдаться путем измерения интенсивности триплетных линий атома Mg из области пересечения атомных пучков при различных поляризациях возбуждающего лазерного излучения.

Авторы благодарны А.З.Девдариани и Ю.Н.Демкову за обсуждение работы.

### Список литературы

- [1] Hertel I.V. //Recent Advances in Molecular Reaction Dynamics. Edition du Centre National de la Recherche Scientifique. Paris, 1986. P 263–274.
- [2] Andersen N., Callagher J.W., Hertel I.V. //Phys. Rep. 1988. Vol. 165. N 1,2. P. 1–188.
- [3] Campbell E.F.B., Schmidt H., Hertel I.V. // Adv. Chem. Phys. 1988. Vol. 72. P. 37–115.
- [4] Bussert W., Neuschafer D., Leone S.R. // J. Chem. Phys. 1987. Vol. 87. N 7. P. 3833–3842.
- [5] Bussert W., Leone S.R. // J. Chem. Phys. Lett. 1987. Vol. 138. N 2,3. P. 276–282.
- [6] Lin K.C., Kleiber P.D., Wang J.X., Stwalley W.C., Leone S.R. //J. Chem. Phys. 1988. Vol. 89. N 8. P. 4771–4776.
- [7] Devdariani A.Z., Zagrebin A.L. // J. Chem. Phys. Lett. 1986. Vol. 131. N 3. P. 197–200.
- [8] Pouilly B., Alexander M.H. // J. Chem. Phys. 1987. Vol. 86. N 9. P. 4790–4800.
- [9] Девдариани А.З., Загребин А.Л. // Хим. физика. 1987. Т. 6. № 5. С. 563–572.
- [10] Девдариани А.З., Загребин А.Л., Леднев М.Г. // Опт. и спектр. 1988. Т. 65. Вып. 3. С. 514–521.
- [11] Загребин А.Л., Церковный С.И. // ЖТФ. 1990. Т. 60. Вып. 9. С. 11–13.
- [12] Иванов Г.К. // Опт. и спектр. 1975. Т. 39. Вып. 5. С. 834–838.
- [13] Иванов Г.К. // Теор. и эксперим. химия. 1978. Т. 14. Вып. 5. С. 610–616.
- [14] Беляев А.К., Загребин А.Л., Церковный С.И. // Хим. физика. 1989. Т. 8. № 4. С. 435–441.
- [15] Загребин А.Л., Церковный С.И. // Хим. физика. 1990. Т. 9. № 6. С. 729–734.
- [16] Груздев П.Ф., Шерстюк А.И. // Опт. и спектр. 1976. Т. 40. Вып. 4. С. 617–621.
- [17] Monteiro T.S., Cooper I.L., Dickinson A.S., Lewis E.L. // J. Phys. 1986. Vol. B19. N 24. P. 4087–4111.
- [18] Никитин Е.Е., Уманский С.Я. Неадиабатические переходы при медленных атомных столкновениях. М.: Атомиздат, 1979. 272 с.
- [19] Беляев А.К., Девдариани А.З. // Опт. и спектр. 1978. Т. 45. Вып. 3, С. 448–453.
- [20] Демков Ю.Н. // ЖЭТФ. 1963. Т. 46. Вып. 2. С. 195–201.
- [21] Загребин А.Л. // ЖЭТФ. 1990. Т. 95. Вып. 1. С. 114–126.
- [22] Дашевская Е.И., Мохова Н.А. // Опт. и спектр. 1972. Т. 33. Вып. 5. С. 817–824.

Механический институт  
Санкт-Петербург

Поступило в Редакцию  
3 апреля 1991 г.