

07;12

## Использование нерезонансного излучения для регистрации ориентированных по спине фотофрагментов

© О.С. Васютинский, Б.В. Пичеев, А.Г. Смолин

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, С.-Петербург

Поступило в Редакцию 3 июля 1998 г.

Предложена техника регистрации анизотропии углового распределения спинов фотофрагментов, использующая эффект двулучепреломления. Проведен сравнительный анализ метода нерезонансной регистрации с традиционно используемой методикой резонансного поглощения. Показано, что техника с использованием эффекта Фарадея позволяет эффективно регистрировать большие концентрации поляризованных фотофрагментов, что является существенным преимуществом перед методом поглощения в условиях оптически толстого слоя. Таким образом, предложенный метод дополняет методику регистрации с использованием магнитного дихроизма и позволяет исследовать высокие концентрации фрагментов.

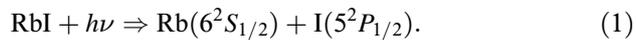
Исследование ориентированных и выстроенных фотофрагментов, образующихся при фотодиссоциации молекул, последнее время привлекает все большее внимание исследователей, поскольку они позволяют получить детальную информацию о динамике фотопроцесса [1]. Изучение связи поляризационных моментов фрагментов с другими векторными характеристиками реакции (векторные корреляции) позволяет исследовать форму и симметрию возбужденных состояний, а также интерференционные эффекты и неадиабатические взаимодействия в диссоциирующих молекулах [2–3].

Ранее в нашей группе была разработана и опробована для исследования ориентированных и выстроенных фотофрагментов методика, состоящая в исследовании поляризации резонансного (по отношению к линии поглощения исследуемых атомов) пробного излучения, прошедшего через ячейку с парами подвергаемых фотолизу солей в присутствии внешнего магнитного поля [4–5]. Наблюдавшиеся сигналы изменения дихроизма атомных паров, модулированные на частоте ларморовской

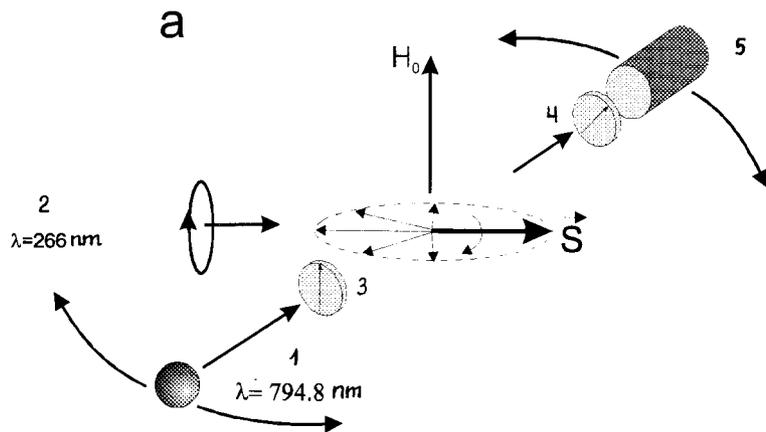
прецессии, позволили получить высокую экспериментальную чувствительность. В экспериментальном сигнале присутствовали вклады от эффектов дихроизма и поглощения света ансамблем исследуемых частиц, что упрощало нормировку. Однако эта методика эффективна только при достаточно низкой концентрации исследуемых фотофрагментов, удовлетворяющей условиям оптически тонкого слоя, что накладывает ограничения на величину наблюдаемых сигналов. Кроме того, используются реальные оптические переходы между состояниями фрагментов, что может искажать исходные распределения относительных населенностей магнитных подуровней исследуемого состояния.

В настоящей работе опробован другой метод регистрации, использующий парамагнитный эффект Фарадея [6–8], который основан на наблюдении поворота плоскости поляризации линейно поляризованного нерезонансного пробного излучения при прохождении через ориентированный атомный пар. По данным авторов ранее для регистрации ориентированных фотофрагментов этот метод не применялся.

Нами исследовалась следующая реакция фотодиссоциации молекул RbI под действием циркулярно поляризованного импульсного излучения 4-й гармоники Nd:YAG лазера с длиной волны 266 nm



Образующиеся в реакции (1) ориентированные по спину атомы рубидия ранее исследовались методом резонансного поглощения в работе [5], в которой наблюдался сигнал модуляции циркулярного дихроизма поглощения атомного пара вследствие прецессии спинов атомов в приложенном поперечном магнитном поле при прохождении через поглощающую ячейку (ПЯ) пробного излучения  $D_1$  линии атома рубидия с длиной волны 794.8 nm. В установке [5] в ПЯ использовалась изотопическая соль  $^{87}\text{Rb}^{127}\text{I}$ ; при этом в качестве источника пробного излучения служила безэлектродная высокочастотная лампа, содержащая тот же изотоп рубидия. В настоящей работе фотолизу подвергалась соль, содержащая изотоп  $^{85}\text{Rb}$ , а источником пробного излучения служила лампа, содержащая изотоп  $^{87}\text{Rb}$ , что обеспечивало сдвиг линии пробного излучения относительно линии поглощения. Пробное излучение проходило через линейный поляризатор, ПЯ и дополнительный линейный поляризатор, скрещенный с первым под углом  $45^\circ$ , как это показано на рис. 1, а.



**Рис. 1.** *a* — геометрия экспериментов: 1 — пробный луч; 2 — циркулярно поляризованный диссоциирующий луч; 3 — линейный поляризатор; 4 — линейный анализатор; 5 — ФЭУ. *b* — экспериментальные сигналы (поглощение). Сигнал 1 записан при использовании лево-, сигнал 2 — правоциркулярно поляризованного излучения диссоциации. Сигнал 3 — разность сигналов 1 и 2.

Типичные экспериментальные сигналы, полученные после накопления 20 импульсов лазера, приведены на рис. 1, *b*. Момент импульса лазера на этом рисунке соответствует времени  $t = 0$ . Вследствие некоторого перекрытия близкорасположенных сверхтонких (СТ) линий двух изотопов рубидия в сигнале присутствует вклад сигнала поглощения — ”ступенька”. Затухание сигналов поглощения обусловлено рекомбинацией атомов в молекулы и их уходом из зоны регистрации. Осциллирующая часть сигнала (сигнал ориентации) обусловлена периодическим изменением двулучепреломления атомного пара вследствие прецессии атомных спинов во внешнем магнитном поле. В описываемых экспериментах в одном случае луч пробного излучения распространялся параллельно лучу лазера диссоциации, а во втором случае эти два луча распространялись под прямым углом друг к другу (рис. 1, *a*). Было обнаружено, что амплитуда сигналов ориентации имела в этих двух случаях разную величину. Это влияние геометрии эксперимента на величину сигналов ориентации объясняется тем, что полный сигнал двулучепреломления обусловлен прецессией векторов ориентации двух

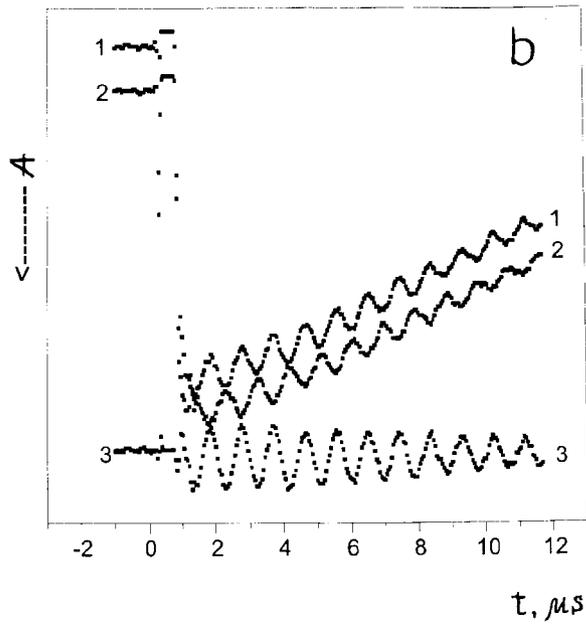


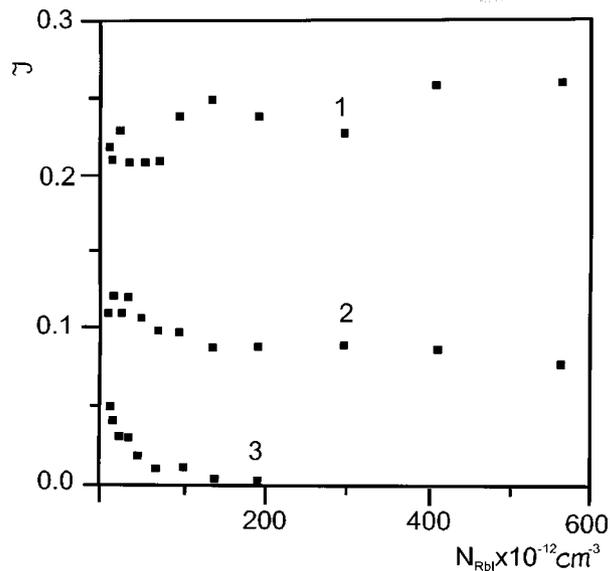
Рис. 1 (продолжение).

СТ подуровней  $F_+$ ,  $F_-$  основного состояния атомов рубидия, причем в одной геометрии сигналы от обеих подуровней складываются, в другой — вычитаются.

Предполагая неразрешенность СТ структуры возбужденных  $6^2P_j$  ( $j = 1/2, 3/2$ ) состояний атомов Rb для пробного излучения на переходах  $2S_{1/2} \Rightarrow 2P_j$ , можно получить следующее выражение для нормированных сигналов ориентации в первом приближении по оптической толщине  $\tau$  [9]:

$$\frac{U}{U_0} = \frac{\frac{11}{4} - j_e(j_e + 1)}{(I + 1)J_{F_+}^a + IJ_{F_-}^a} \times \left[ \frac{(I + 1)(2I + 3)}{3(2I + 1)} J_{F_+}^d \pm \frac{I(2I - 1)}{3(2I + 1)} J_{F_-}^d \right] \frac{1}{2} P_e \exp(-\Gamma t), \quad (2)$$

где "+" в выражении в квадратных скобках соответствует параллельной, "-" — перпендикулярной геометрии,  $J_{F_+}^a$ ,  $J_{F_-}^a$  — интегралы перекры-



**Рис. 2.** Зависимость амплитуды сигналов ориентации от концентрации молекул при использовании различных методов регистрации: 1 — фарадеевская регистрация, перпендикулярная геометрия; 2 — фарадеевская регистрация, параллельная геометрия; 3 — резонансная регистрация, параллельная геометрия.

вания профилей сверхтонких компонент пробного излучения со СТ компонентами спектра поглощения исследуемого изотопа и  $J_{F_+}^d$ ,  $J_{F_-}^d$  — интегралы перекрывания профилей СТ компонент пробного излучения с дисперсионным контуром исследуемого изотопа на переходах  $F_+ \Rightarrow j$  и  $F_- \Rightarrow j$  соответственно.  $P_e = \langle S_z \rangle / S$  — степень начальной электронной ориентации спинов атомов,  $j_e = 1/2, 3/2$  — полный электронный угловой момент возбужденного  $^2P_j$  состояния атомов.

Знаки интегралов  $J_{F_+}^d$ ,  $J_{F_-}^d$  в (2) определяются знаком отстройки частоты пробного излучения от резонансной линии поглощения, при этом сигнал ориентации больше для перпендикулярной схемы регистрации, чем для параллельной схемы, что и наблюдалось в эксперименте.

Соотношения сигналов ориентации для случаев резонансной и нерезонансной регистрации, приведенных к одинаковой величине сигнала

поглощения, в зависимости от концентрации молекулярного пара в ПЯ приведены на рис. 2. Видно, что при увеличении концентрации диссоциирующих молекул методика, использующая фарадеевскую регистрацию ориентированных атомов, обеспечивает значительно большие величины экспериментальных сигналов.

Таким образом, преимуществом опробованной методики в поляризационной спектроскопии фотофрагментов является возможность регистрации высоких концентраций ориентированных и выстроенных атомов, а также отсутствие влияния пробного излучения на их ориентацию. Дальнейшее развитие метода исследования ориентированных фотофрагментов при помощи эффекта Фарадея может быть осуществлено при использовании в качестве источника пробного излучения перестраиваемого лазера, обладающего высокой стабильностью и монохроматичностью излучения и дающего возможность оптимизировать параметры регистрации по величине отстройки частоты пробного излучения от атомной линии поглощения.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, грант 98-02-18313Р.

## Список литературы

- [1] *Proc. Stereodynamics of Chemical Reactions*. December 1–5. 1996. Bielefeld, Germany.
- [2] *Васютинский О.С.* // Химическая физика. 1986. Т. 5. С. 768–777.
- [3] *Glass-Maugean M., Beswick A.* // *Phys. Rev. A*. 1987. V. 36. P. 1170–1180.
- [4] *Kupriyanov D.V., Sevastianov B.N., Vasyutinskii O.S.* // *Z. fur Physik D: Atoms, Molecules and Clusters*. 1990. V. 15. P. 105–115.
- [5] *Kupriyanov D.V., Picheyev B.V., Vasyutinskii O.S.* // *J. Phys. B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. 1993. V. 26. P. L803–810.
- [6] *Cohen-Tannoudji Laloë F.* // *J. Phys.* 1967. V. 28. P. 505–513.
- [7] *Happer W.* // *Rev. Mod. Phys.* 1972. V. 44. N 2. P. 169–249.
- [8] *Куприянов Д.В., Соколов И.М., Субботин С.В.* // *ЖЭТФ*. 1987. Т. 93. С. 127–140.
- [9] *Picheyev B.V., Smolin A.G., Vasyutinskii O.S.* // *J. Phys. Chem. A*. 1997. V. 101. P. 7614–7626.