

УДК 539.184:538.27

СПИН-ОБМЕННОЕ УШИРЕНИЕ ЛИНИИ МАГНИТНОГО РЕЗОНАНСА АТОМОВ КАЛИЯ

© 1999 г. Е. Б. Александров*, М. В. Балабас*,
А. К. Вершовский*, А. И. Окуневич**, Н. Н. Якобсон*

*Всероссийский научный центр "Государственный оптический институт им. С.И. Вавилова",
199034 Санкт-Петербург, Россия

**Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе, 194021 Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 14.01.99 г.

Проведено новое измерение сечения спинового обмена атомов калия в основном состоянии. Непосредственно измерялась зависимость ширины линии магнитного резонанса на переходе $F = 2$, $m_F = -2 \leftrightarrow m_F = -1$ от плотности паров калия. Плотность паров измерялась по поглощению света одностороннего лазера, настроенного на центр D_1 -линии 769.9 нм. Получено сечение $3.55(0.25) \text{ см}^2$.

Сечения спин-обменных столкновений для атомов калия измерялись ранее в экспериментах [1] по распаду "в темноте" сверхтонкой поляризации, созданной оптической накачкой, а также по ширине линии электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) [2] в сильном поляризующем магнитном поле. Результаты этих измерений существенно различаются (примерно в 2 раза), и прямое их сравнение затруднительно, так как эксперименты в работах [1, 2] проводились при существенно различных температурах и магнитных полях, при которых измерялось сечение спин-обмена.

Аналогичные измерения могут быть проведены в малых полях с помощью оптической ориентации при условии выделения изолированных линий спектра магнитного резонанса. Переходы микроволнового диапазона ($\Delta F = \pm 1$) удобны простотой выделения ряда изолированных линий уже в земных полях и прежде всего так называемого 0–0-перехода, практически не подверженному уширению за счет неоднородности магнитного поля. Однако микроволновые (МВ) переходы требуют применения буферных газов для надежного подавления доплеровского уширения, а буферный газ вносит свой вклад в уширение, что в совокупности существенно осложняет выделение спин-обменной составляющей ширины линии. Поэтому мы предпочли обратиться к радиочастотным (РЧ) переходам $\Delta F = 0$, $\Delta m_F = \pm 1$, спектр которых в случае калия оказывается также полностью разрешенным уже в субземных магнитных полях при использовании кювет без буферного газа, но с парафиновым покрытием [3].

Отличие настоящей работы от [1] состоит прежде всего в прямом измерении концентрации паров калия по оптическому поглощению в центре D_1 -линии. Наши предшественники пользова-

лись табличными значениями зависимости плотности насыщенных паров от температуры.

Новое измерение сечения спинового обмена в калии мы сочетали с определением минимальной ширины линии магнитного резонанса, что представляет прикладной интерес, так как минимальная ширина резонанса входит в число основных факторов, определяющих предельную разрешающую способность калиевого магнитометра, лидирующего в настоящее время по своим метрологическим характеристикам [4].

Вычисление сечения спин-обмена из ширины линии изолированных переходов требует привлечения детальной теории спин-обмена. К настоящему времени опубликовано много теоретических работ [5–10], описывающих спиновый обмен. Все они дают одинаковый результат в предположении о том, что при столкновении сохраняется суммарный спин электронов сталкивающихся атомов, что обычно оправдывается с высокой точностью при не слишком низких температурах. Используя это предположение и пренебрегая в кинетических уравнениях спин-обмена нелинейными членами, что оправдано при малой поляризации атомов, эволюцию недиагональных элементов (когерентностей) матрицы плотности $f_{FmF'm'}$ одинаковых атомов щелочного металла со спином ядра I можно описать следующим уравнением:

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} f_{FmF'm'} \right)_{\text{ex}} = -\gamma_{\text{ex}} Z_{FmF'm'} f_{FmF'm'}, \quad (1)$$

где

$$Z_{FmF'm'} = \sum A_{FmF'm'}(L) Z_{FF'}(L), \quad (2)$$

$$A_{FmF'm'} = \frac{2L+1}{2F'+1} (C_{L\Lambda Fm}^{F'm'})^2, \quad (3)$$

$$Z_{FF'}(L) = (1 - \delta_{L,1}) P_{FF'}(0, 1) + \sum_{K=1}^{2L} P_{FF'}(K, L), \quad (4)$$

$$P_{FF'}(K, L) = 3(2K+1)(2F+1)(2F'+1) \left\{ \begin{matrix} 1/2 & I & F \\ 1/2 & I & F' \\ 1 & K & L \end{matrix} \right\}^2. \quad (5)$$

Формулы (2)–(5) с фигурирующими в них коэффициентами Клебша–Гордана и $9j$ -символами [11], взяты из работы [8], из которой получается наиболее компактное выражение для величины $(\gamma_{ex} Z_{FmF'm'})$, равной вкладу спин-обмена в ширину линии резонанса на переходе $Fm \rightarrow F'm'$.

Константа γ_{ex} в уравнении (1) выражается через сечение спин-обмена σ_{ex} при помощи соотношения

$$\gamma_{ex} = N v \sigma_{ex}, \quad (6)$$

в котором N – концентрация атомов, $v = 4\sqrt{k_B T / \pi M_A}$ – средняя скорость их относительного движения (k_B – постоянная Больцмана, T – температура, M_A – масса атома). Сечение σ_{ex} спин-обмена определяется формулой

$$\sigma_{ex} = \left\langle \frac{\pi}{k^2} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) \sin^2 [\delta_0(l) - \delta_1(l)] \right\rangle \quad (7)$$

через волновой вектор k и угловой момент l относительного движения атомов и через фазы $\delta_s(l)$ парциального рассеяния на синглетном ($S=0$) и триплетном ($S=1$) потенциалах щелочной молекулы. Угловые скобки в формуле (7) обозначают усреднение по максвелловскому распределению относительных скоростей атомов.

Из формул (2)–(5) следует, что матрица $Z_{FmF'm'}$ из уравнения (1) симметрична относительно перестановки пар индексов и смены знака индексов m и m' : $Z_{FmF'm'} = Z_{F'm'Fm}$ и $Z_{FmF'm'} = Z_{F-mF'-m'}$. В случае спина ядра $I=3/2$ матрица из своих 30 элементов для переходов с $\Delta F=0, \pm 1, \Delta m=0, \pm 1$ имеет всего 3 различных элемента для РЧ переходов и

4 – для МВ переходов. Численные значения этих элементов приведены в табл. 1.

Из табл. 1 следует, что спин-обменные ширины РЧ переходов в соответствии с теорией различаются мало: от минимальной до максимальной – менее чем в 1.3 раза. Поэтому в эксперименте мы ограничились измерением ширины наиболее сильной в наших условиях линии $m=-2 \leftrightarrow m'=-1$.

Измерение спин-обменного уширения проводилось в традиционной однолучевой схеме оптической ориентации с детектированием сигнала когерентности (см., например, [4]). Источниками света накачки в этих опытах с близкими эффективностями служили калиевая высокочастотная безэлектродная лампа с фильтром для выделения D_1 -линии калия или инжекционный лазер, стабилизированный по нелинейному резонансу в D_1 -линии поглощения паров калия во вспомогательной кювете [4, 12]. Излучение источника после циркулярного поляризатора направлялось в основную кювету с парами калия. Кювета была выполнена в виде сферы диаметром 150 мм с внутренним парафиновым покрытием. Металлический калий находился в оторостке, отделенном от объема кюветы стеклянной диафрагмой, имеющей калиброванное отверстие диаметром 1 мм. Кювета после изготовления подверглась процедуре “созревания” покрытия [1], состоящей в многодневном поддержании ее при температуре около 60°C. (По мере созревания растут до насыщения плотность паров калия в кювете и время спиновой релаксации.) Температура кюветы и оторостка контролировалась независимым образом. Свет, прошедший через кювету, регистрировался кремниевым фотодиодом. Оптическая ось располагалась под углом 30° к вектору постоянного магнитного поля. Радиочастотное поле возбуждалось катушкой с осью, ортогональной плоскости, заданной оптической осью и вектором постоянного поля. Постоянное поле создавалось системой колец и стабилизировалось с помощью цезиевого квантового магнитометра на уровне 50 мкТл.

В прошедшем свете регистрировался сигнал когерентности, т.е. интенсивность света, промодулированная на частоте переменного поля. В поле 50 мкТл для ^{39}K полностью разрешены все шесть линий переходов $\Delta F=0, \Delta m_F = \pm 1$. При выбранном нами знаке циркулярной поляризации света наиболее мощным был самый высокочастотный резонанс $m_F = -2 \leftrightarrow m_F = -1$. На этом резонансе и проводились все измерения. Резонанс записывался при сканировании частоты радиочастотного поля с помощью техники синхронного детектирования. Фаза опорного напряжения на синхронный детектор подбиралась так, что резонанс имел форму симметричной дисперсионной кривой. Определялась ширина Δf резонанса как половина расстояния между экстремумами кривой в шкале частот.

Таблица 1

$\Delta F, \Delta m$	$\Delta F=0$ (РЧ переходы)			$\Delta F=1$ (МВ переходы)			
	22, 21	21, 20	11, 10	22, 11	21, 11	21, 10	20, 10
$Fm, F'm'$	22, 21	21, 20	11, 10	22, 11	21, 11	21, 10	20, 10
$192 Z_{FmF'm'}$	54	63	69	92	108	76	60

Собственная ширина Δf_0 находилась экстраполяцией Δf к нулевым значениям интенсивности света накачки и амплитуды радиочастотного поля величины Δf . Скорость поперечной релаксации Γ (релаксации когерентности) связана с измеренной шириной соотношением $\Gamma = 2\pi\Delta f_0$.

Релаксация когерентности атомов калия происходит в объеме кюветы за счет спин-обменных межатомных столкновений, на поверхности кюветы и вследствие ухода атомов из объема кюветы в отросток. Эти две последние составляющие в сумме могут быть определены при экстраполяции концентрации атомов калия к нулю, когда объемная релаксация устраняется.

Одной из главных проблем при измерениях такого типа выступает проблема определения концентрации атомов калия. Традиционный способ измерения концентрации по температуре насыщающих паров в настоящем случае нуждается в дополнительной экспериментальной проверке, поскольку в условиях наших опытов устанавливается динамическое равновесие между процессами поступления атомов калия из отростка через диафрагму и необратимого поглощения атомов калия в парафиновом покрытии кюветы. Поэтому концентрация паров в объеме кюветы должна быть ниже концентрации насыщающих паров в отростке. Специальные измерения времени релаксации плотности паров калия в кювете в условиях перекрытия поступления паров из отростка показали, что скорость поглощения паров резко возрастает с повышением температуры поверхности колбы [13]. В работе [1] проводилось сопоставление поглощения излучения D_1 -линии калия в рабочей кювете с поглощением его в аналогичной кювете, на внутренней поверхности которой (также парафинированной) был распылен металлический калий. Предполагалось, что в этой кювете устанавливается давление насыщенных паров калия. Был обнаружен примерно 20%-ный дефицит плотности паров калия в рабочей кювете. Мы прибегли к такому же сравнению и обнаружили постоянное превышение плотности паров на 26% в кювете без покрытия относительно плотности паров в кювете с парафинированной поверхностью в интервале температур 315–343 К (рис. 1). Экспериментальные зависимости аппроксимированы функцией $\log \kappa = A - B/T$, где κ – показатель поглощения в см^{-1} , а T – абсолютная температура. Для обеих кювет константа B найдена равной 38.6 ± 0.3 . Константа A для кюветы с покрытием равна 10.16 ± 0.05 , а для стеклянной кюветы – 10.37 ± 0.08 . (Вблизи температуры 70°C наблюдается скачок плотности паров калия в кювете, предположительно связанный с плавлением пленки парафина.)

В отличие от авторов работы [1] у нас не было уверенности в том, что плотность паров в кон-

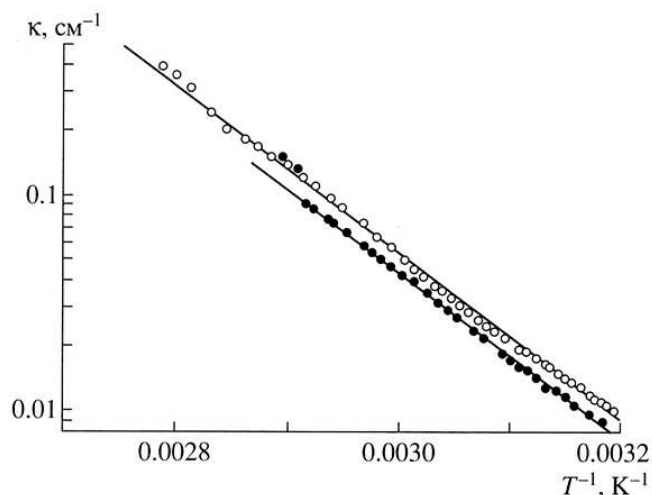


Рис. 1. Зависимость показателя поглощения кювет с парами калия в центре D_1 -линии от температуры. Сплошные линии – логарифмическая аппроксимация (см. текст). \circ – стеклянная ячейка, \bullet – ячейка с покрытием.

трольной кювете с непокрытыми стенками соответствует плотности насыщенных паров. Кроме того, литературные данные по плотностям насыщенных паров твердого калия немногочисленны и обнаруживают существенные (порядка 30%) различия между собой [5, 14]. Вместе с тем у нас были все основания доверять абсолютным измерениям оптической плотности паров калия, поскольку в нашей работе (в отличие от [1]) в качестве источника излучения использовалась не резонансная лампа со свойственной ей большой (доплеровской) шириной спектральных линий и неполной определенностью их контуров, а одночастотный инжекционный лазер, стабилизированный точно в центре D_1 -линии (769.9 нм) поглощения калия. Частота лазера стабилизировалась по нелинейному резонансу поглощения на середине интервала между двумя крайними сверхтонкими компонентами D_1 -линии [12].

Полученные данные по оптической плотности позволяют прямо вычислить плотность паров калия (N), используя известные соотношения [15]:

$$\kappa = \frac{2}{\Delta\nu_D} \sqrt{\pi \ln 2} \frac{e^2}{mc} N f \delta_{hf},$$

где $\Delta\nu_D$ – доплеровская ширина линии, выраженная через частоту перехода ν_0 (в Гц), температуру T и молекулярный вес M атома (в а.е.); e , m , c – заряд электрона, его масса и скорость света,

$$\Delta\nu_D = 7.16 \times 10^{-7} \nu_0 \sqrt{\frac{T}{M}}.$$

В интервале 20–54°C доплеровская ширина изменяется от 765 до 808 МГц. Сила осциллятора (f)

Таблица 2

$t, ^\circ\text{C}$	$\Gamma, \text{Гц}$	$\kappa \times 10^3, \text{см}^{-1}$	$N \times 10^{-8}, \text{см}^{-3}$	$\kappa' \times 10^3, \text{см}^{-1}$	$N' \times 10^{-8}, \text{см}^{-3}$	$N'' \times 10^{-8}, \text{см}^{-3}$
20	0.04 (0.03)	1.06	1.31	0.90	1.34	2.4
24	0.05	1.6	1.97	1.37	2.03	3.8
28	0.05	2.4	2.93	2.04	3.03	6.1
36	0.06 (0.07)	5.2	6.31	4.41	6.57	14.8
42	0.13 (0.11)	9.06	10.95	7.66	11.44	27.7
45	0.13	11.9	14.3	10.02	14.97	37.7
46	0.16 (0.17)	13	15.6	10.95	16.36	41.9
50	0.22	18.4	22.0	15.50	23.19	62.1
54	0.35	25.9	30.96	21.77	32.60	91.6

была принята равной 0.35. Наличие сверхтонкой структуры спектральной линии снижает спектральную плотность поглощения в центре линии, что учитывается множителем δ_{hfs} . В случае калия это снижение незначительно ввиду малости сверхтонкого расщепления по сравнению с доплеровской шириной (рис. 2). На рисунке показано взаимное расположение в шкале частот компонентов сверхтонкой структуры D_1 -линии ^{39}K (сплошные линии) и ^{41}K (штриховые линии) [16]. Высота вертикальных линий пропорциональна интенсивности соответствующих компонентов. Их положения в шкале частот относительно линии a ($4^2S_{1/2}, F=2 \Leftrightarrow 4^2P_{1/2}, F'=1$) равны соответственно (в мегагерцах) [17]: b ($F=2 \Leftrightarrow F'=2$) – 55.6, c ($F=1 \Leftrightarrow F'=1$) – 461.7, d ($F=1 \Leftrightarrow F'=2$) – 517.3. Аналогично a' – 328.6, b' – 359, c' – 582.6, d' – 613.

Частота лазера ν_l стабилизировалась на середине расстояния между линиями a и d . При этом снижение оптической плотности при смещении относительно центра доплеровской линии без

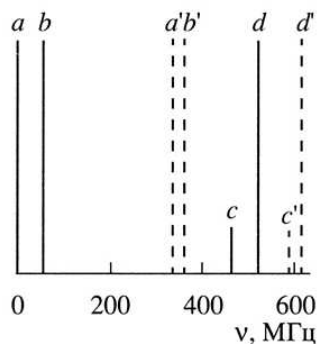


Рис. 2. Взаимное расположение компонентов сверхтонкой структуры D_1 -линии калия для двух изотопов: ^{39}K (сплошные линии) и ^{41}K (штриховые линии).

сверхтонкой структуры определяется множителем

$$\delta_{hfs} = \frac{\sum_j I_j \exp\left[-4\left(\frac{\nu_j - \nu_l}{\Delta\nu_D}\right)^2 \ln 2\right]}{\sum_j I_j}$$

В этом выражении ν_j означает частоту компонента j с интенсивностью I_j . По результатам вычислений δ_{hfs} не сильно отличается от единицы, изменяясь в интервале температур 20–54°C от 0.763 до 0.785.

Таблица 2 содержит исходные данные эксперимента: температуру (t) кюветы, полуширину (Γ^1) линии резонанса, показатель поглощения паров калия в центре линии (κ), а также вычисленную концентрацию (N). Для сравнения в последней колонке представлены концентрации насыщенного пара калия (N'') по данным [14], уменьшенные на 26%, т.е. в предположении, что в контрольной кювете без парафинового покрытия давление пара соответствует насыщающему. Как видно, концентрации N'' и N различаются в 2–3 раза. Столь значительное расхождение заставило привлечь дополнительные данные по поглощению излучения лазера, настроенного на этот раз на центр D_1 -линии ^{41}K . Соответствующие значения показателя поглощения κ' также приведены в табл. 2 вместе с вычисленными по ним концентрациям N' . Значения κ' оказались систематически более низкими, чем значения κ , как и следовало ожидать. При этом значения вычисленных концентраций N' совпали со значениями концентраций N с точностью до 5%. Заметим, что при просвечивании кюветы излучением лазера, настроенным почти точно на более слабую сверхтонкую компоненту контура линии ^{39}K , были получены чуть бóльшие значения концентрации.

¹ Значения ширины в скобках получены при обратном ходе температуры кюветы и характеризуют разброс измерений.

Это существенно, потому что позволяет отбросить предположение об оптической накачке лазерным излучением². Такая накачка в принципе могла бы дать заниженные значения концентрации, но в калии перекачка между сверхтонкими подуровнями при любых условиях мала из-за малости сверхтонкого расщепления. Кроме того, при перестройке линии накачки с центра контура поглощения на край следует ожидать увеличения эффективности накачки, что могло бы привести к снижению измеренной концентрации, однако этого не произошло. Поскольку практически совпадающие данные о концентрации паров были получены в результате измерения поглощения в разных частях контура линии, то далее использовались только данные о концентрациях, полученные на основании прямых измерений оптической плотности паров калия.

На рис. 3 представлена зависимость полуширины линии резонанса от произведения $X = NT^{1/2}$. Ее аппроксимация прямой линией $\Gamma = \Gamma_0 + \sigma Nv = \Gamma_0 + CX$ позволяет оценить предельную ширину линии $\Gamma_0 = 0.016(0.009)$ Гц и величину $C = 5.26(0.38) \times 10^{-12}$ Гц/(см⁻³ T^{1/2}), характеризующую сечение процесса $\sigma = 2\pi C / \{4[k_B / (\pi M_A)^{1/2}]\} = 1.00(0.07) \times 10^{-14}$ см².

Возвращаясь с помощью (1) и (6) к сечению σ_{ex} , получаем

$$\sigma_{ex} = 192\sigma/54 = 3.55(0.25) \times 10^{-14} \text{ см}^2.$$

Представляет интерес сравнить результат измерения σ_{ex} с данными других авторов, приведенными в табл. 3. Из этой таблицы следует, что полученное нами значение сечения на 33% превышает значение σ_{ex} , приведенное в работе [1]. Это различие вызвано, по-видимому, завышением в

² Это предположение не было проверено в ходе проведения экспериментов.

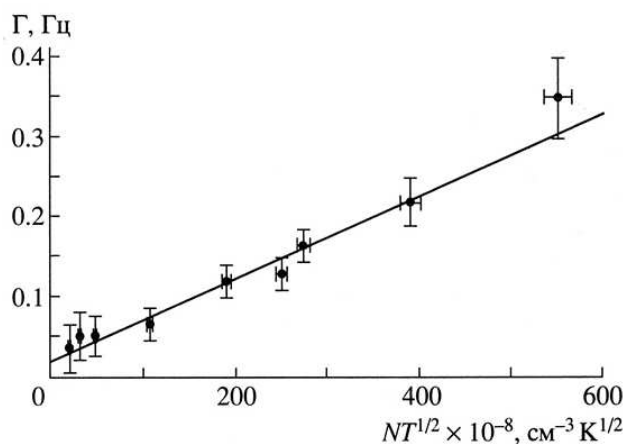


Рис. 3. Зависимость собственной ширины магнитного резонанса от концентрации атомов калия.

этой работе концентрации атомов калия в рабочей ячейке, что подтверждается нашими данными (табл. 2). Значение σ_{ex} из [2], как видно из табл. 3, в 2.5 раза меньше полученного в настоящей работе. Такое значительное расхождение не может быть связано с неточностью определения концентрации атомов калия, так как в этой работе концентрация атомов калия определялась путем сравнения сигналов поглощения СВЧ мощности для атомов калия и для известного количества ионов Cu^{++} в сульфате меди. Причина отличия нашего результата от результата работы [2] кроется, по-видимому, в большом различии температур и магнитных полей. Что касается температуры, то из теории работ [16, 18] следует, что сечение с ростом температуры уменьшается, однако не столь сильно, чтобы объяснить обсуждаемое расхождение результатов измерений сечений. Основным фактором, сильно уменьшающим сече-

Таблица 3

Эксперимент				Теория			
$\sigma_{ex} \times 10^{14}, \text{ см}^2$	T, К	$B \times 10^4, \text{ Тл}$	источник	$\sigma_{ex} \times 10^{14}, \text{ см}^2$	T, К	$B \times 10^4, \text{ Тл}$	источник
2.7 ± 0.7	315–340	0.5	[1]*	1.41	500		
				1.34	1000	0	[16]
				1.25	3000		
$1.45_{-0.19}^{+0.12}$	600	3375	[2]**	1.5	540	0	[19]
				4.88	300		
3.55 (0.25)	293–327	0.5	Настоящая работа**	4.76	405	0	
				4.68	500		[18]
				4.62	540		

* Сечение измерялось по распаду $\langle SI \rangle$.

** Сечение измерялось по ширине линии перехода $(2, -2) \longleftrightarrow (2, -1)$.

ние, является, по-видимому, большое магнитное поле, использовавшееся в работе [2].

Сравнение полученного нами значения сечения с расчетными значениями σ_{ex} из работ [16, 18, 19] показывает, что наша оценка сечения лежит примерно посередине между результатами работ [16, 19], в которых сечение вычислялось полуклассическим методом, и результатом работы [18], в которой расчет сечения проводился квантовым методом при малых значениях l ($l \leq 147$) и полуклассическим методом при больших l ($l > 147$).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Grossetete F., Brossel J. // Compt. Rend. 1967. V. 264. P. 381–384.
2. Ressler N.V., Sands R.H., Stark T.E. // Phys. Rev. 1969. V. 184. № 1. P. 102–118.
3. Александров Е.Б., Бонч-Бруевич В.А., Провоторов С.В., Якобсон Н.Н. // Опт. и спектр. 1985. Т. 58. В. 3. С. 953–954.
4. Alexandrov E.B., Balabas M.V., Pazgalev A.C., Verzhovskii A.K., Yakobson N.N. // Laser Phys. 1996. V. 6. № 2. P. 244–251.
5. Grossetete F. // J. de Phys. 1964. V. 25. № 4. P. 383–396.
6. Grossetete F. // J. de Phys. 1968. V. 29. № 5–6. P. 456–466.
7. Pinard M., Laloë F. // J. de Phys. 1980. V. 41. № 8. P. 769–797.
8. Окуневиц А.И. Оптическая ориентация атомов и молекул. Л., 1987. С. 65–76.
9. Окуневиц А.И. // Опт. и спектр. 1994. Т. 77. № 2. С. 178–186.
10. Окуневиц А.И. // Опт. и спектр. 1995. Т. 79. № 5. С. 718–728.
11. Варшалович Д.А., Москалев А.Н., Херсонский В.К. Квантовая теория углового момента. Л., 1975.
12. Александров Е.Б., Балабас М.В., Вершовский А.К., Иванов А.Е., Якобсон Н.Н., Величанский В.Л., Сенков Н.В. // Опт. и спектр. 1995. Т. 78. № 2. С. 325–333.
13. Балабас М.В., Бонч-Бруевич В.А. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. № 7. С. 6–8.
14. Несмеянов А.Н. Давление пара химических элементов. М.: Изд-во АН СССР, 1961.
15. Фриш С.Э. Оптические спектры атомов. М.; Л.: ФМ, 1963. С. 393.
16. Смирнов В.М., Чибисов М.И. // ЖЭТФ. 1965. Т. 48. № 3. С. 939–945.
17. Radzig A.A., Smirnov V.M. Reference data on atoms, molecules, and ions. Berlin; N.Y.: Springer-Verlag, 1985. 463 p.
18. Chang C.K., Walker R.H. // Phys. Rev. 1969. V. 178. № 1. P. 198–204.
19. Dalgarno A., Rudge M.H.R. // Proc. Roy. Soc. (London). 1965. V. A286. № 1407. P. 519–524.