

САНКТ - ПЕТЕРБУРГСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ
УНИВЕРСИТЕТ

На правах рукописи

Чесноков Евгений Александрович

**ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНЫЕ СЕЧЕНИЯ
РАССЕЯНИЯ АТОМОВ
В ПРИВЛИЖЕНИИ СЛАБОЙ СВЯЗИ**

Специальности:

01.04.05 - оптика

01.04.02 - теоретическая физика

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико - математических наук

Санкт - Петербург

1998

Работа выполнена на кафедре оптики физического факультета Санкт - Петербургского государственного университета.

Научный руководитель:

доктор физико - математических наук,
профессор *Девдариани А.З.*

Официальные оппоненты:

доктор физико - математических наук,
профессор *Островский В.Н.*,
кандидат физико - математических наук,
ведущий научный сотрудник *Вартамян Т.А.*

Ведущая организация:

Институт химической физики РАН им. Н.Н.Семенова.

Защита состоится " 18 " июня 1998 г. в 17⁰⁰ час.
на заседании диссертационного совета К 063.57.10 по защите дис-
сертации на соискание ученой степени кандидата наук в Санкт -
Петербургском государственном университете по адресу: 199034,
Санкт - Петербург, Университетская наб., д.7/9.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке СПбГУ.

Автореферат разослан " 15 " мая 1998 г.

Ученый секретарь
диссертационного совета,
кандидат физ. - мат. наук



Тимофеев Н.А.

Общая характеристика работы

АКТУАЛЬНОСТЬ темы диссертации определяется существенно возросшим в последнее время интересом к исследованию угловых и поляризационных зависимостей сечений рассеяния [1, 2]. Для современной физики атомных столкновений характерно стремление к постановке и анализу так называемых "полных экспериментов", в ходе которых рассматривается переход из фиксированного начального зеemanового состояния при определенной энергии столкновения в фиксированное конечное зеemanово состояние при рассеянии на определенный угол с одновременным измерением образующихся в ходе реакции спектров. Реально, такие эксперименты стали возможны благодаря развитию техники совпадений при регистрации нейтральных и возбужденных атомов, а также использованию лазеров для создания и контроля оптической поляризации. С одной стороны данные по дифференциальному рассеянию и рассеянию оптически ориентированных атомов несут гораздо большую информацию о потенциалах межатомных взаимодействий нежели простой эксперимент по измерению полных сечений рассеяния неполяризованных атомов, с другой – заметно возросший уровень постановки эксперимента позволяет измерять подобные зависимости с точностью, требующей детальной теоретической интерпретации. Среди возможных теоретических подходов к описанию процессов дифференциального рассеяния атомов квазиклассический подход обеспечивает наиболее ясную интерпретацию эксперимента, устанавливая при этом прозрачную связь между потенциалами межатомных взаимодействий и наблюдаемыми особенностями дифференциальных сечений рассеяния. Поэтому весьма актуальным представляется рассмотрение равномерного квазиклассического приближения, которое позволяет максимально близко воспроизводить результаты точных квантовомеханических вычислений и в то же время сохраняет все преимущества аналитического описания.

ЦЕЛЬ настоящей диссертационной работы – исследование возможностей равномерного квазиклассического приближения при описании процессов неупругого рассеяния медленных атомов.

Основное внимание уделяется при этом исследованию зависимости сечения от угла рассеяния, а также от ориентации атомного углового момента (оптической поляризации) до и после столкновения. Более конкретно, в диссертационной работе были поставлены и решены следующие задачи:

1) На примере модели двух монотонно отталкивательных термов со слабым взаимодействием исследована структура дифференциального сечения (ДС) во всей области углов рассеяния, при этом квазиклассические методы обобщены на случай описания рассеяния в области углов, традиционно трактуемой как сугубо квантовая, получены формулы для амплитуды и ДС рассеяния, равномерно описывающие рассеяние в областях квантовых и классических углов.

2) На основе обобщенного квазиклассического подхода рассчитаны ДС для сложного процесса столкновения, идущего с участием многих квазимолекулярных состояний. В качестве такого процесса была выбрана реакция изменения спина в ходе рассеяния оптически ориентированных атомов $Ca^*(4s5p, ^1P_1)$ на He .

НАУЧНАЯ НОВИЗНА И ПРАКТИЧЕСКАЯ ЦЕННОСТЬ работы состоят в следующем:

1. В работе проведено детальное рассмотрение ДС рассеяния в случае слабого экспоненциального взаимодействия двух монотонно отталкивательных термов. Получена равномерная формула, которая позволяет проследить за изменением структуры ДС при переходе из области осцилляций в область радужного рассеяния и, далее, в область подбарьерных переходов, при этом дифференциальное сечение представлено как функционал от классических функций импульса, действия и угла отклонения, которые содержат всю необходимую информацию о рассматриваемых термах. Достигнутая равномерность описания существенна для корректного проведения процедуры восстановления термов из данных по дифференциальному рассеянию (см., например [3]). На основе выведенной системы уравнений стационарности исследовано движение точек перевала в комплексных плоскостях межъядерного расстояния и углового момента в зависимости от меняющегося угла рассеяния, а также от параметра экспоненты взаимодействия. Анализ движения точек перевала выполнен как в области осцилляций, так и в области подбарьерных переходов. Полученные результаты могут быть также использованы для описания опти-

ческих спектров, формируемых при парных столкновениях атомов в случае излучения из квазистационарного состояния, радиационная ширина которого убывает по экспоненциальному закону.

2. Для частного случая взаимодействия двух кулоновских термов получена равномерная формула, непосредственно выражающая ДС через угол рассеяния. Данная формула представляет самостоятельный интерес при описании процессов нерезонансной перезарядки на положительных ионах.

3. Предложена равномерная формула для полного сечения рассеяния, которая применима при энергиях столкновения как больших, так и меньших пороговой. Формула дает правильную оценку сечения в области энергий, близких к пороговой и выходит на известный полуклассический результат Ландау по мере роста энергии.

4. Выполнен полный полуклассический анализ процесса неупругого дифференциального рассеяния оптически ориентированных атомов $Ca^*(4s5p, ^1P_1)$ на He . Рассмотрены ДС рассеяния из начального зееманового состояния геликоптерной поляризации в конечные зеемановы состояния, соответствующие трем подуровням тонкой структуры триплетного 3P терма атома Ca . Конкретный расчет ДС произведен для энергии столкновения в системе центра масс, равной 1eV . Рассмотрено рассеяние как в области классических, так и в области малых (диффракционных) углов. Предложена квазиклассическая формула, которая равномерно описывает ДС рассеяния оптически поляризованных атомов как в области малых, так и в области классических углов. На основании рассчитанных функций отклонения, а также полуклассических моделей неадиабатических переходов установлена связь между особенностями ДС рассеяния и видом квазимолекулярных термов. Рассчитанные ДС демонстрируют лево - правую азимутальную асимметрию рассеяния. Указанная асимметрия интерпретируется в терминах "gradual locking" аппроксимации. Показано, что параметры, входящие в "locking" матрицы, ответственны за азимутальную асимметрию рассеяния. Полученные результаты можно рассматривать как теоретическое предсказание явлений, регистрация которых возможна в ходе ожидаемого эксперимента. Результаты содержат информацию, необходимую для планирования эксперимента по дифференциальному рассеянию оптически ориентированных атомов Ca на He и могут быть также ис-

пользованы при анализе ДС рассеяния для аналогичных атомных систем, например, при рассмотрении рассеяния атомов Ca на Ne .

АПРОБАЦИЯ РАБОТЫ И ПУБЛИКАЦИИ. Основные результаты диссертационной работы докладывались на двух международных конференциях, на 16 Всероссийской школе - симпозиуме молодых ученых по химической кинетике, на научных семинарах кафедры оптики и кафедры квантовой механики НИИФ СПбГУ, а также на научном семинаре Физико - технического института и опубликованы в двух статьях и двух тезисах докладов конференций, список которых приведен в конце автореферата.

СТРУКТУРА И ОБЪЕМ ДИССЕРТАЦИИ. Диссертация состоит из введения, трех глав и заключения, общим объемом в 121 страницу, содержит 35 рисунков, 4 таблицы и список литературы из 74 наименований.

Содержание работы

ВО ВВЕДЕНИИ обоснован выбор темы диссертации, сформулирована цель исследования, показана актуальность рассматриваемой проблемы, а также изложены основные результаты, полученные в диссертационной работе, подчеркнуты их научная новизна и практическая ценность.

Первые две главы диссертации посвящены равномерному описанию ДС рассеяния в случае модели двух монотонно отталкивательных термов со слабым взаимодействием.

В ПЕРВОЙ ГЛАВЕ рассматривается случай постоянного взаимодействия между двумя пересекающимися термами. Исходя из равномерной формулы для S - матрицы [4] в первом порядке метода искаженных волн получены выражения для амплитуды и ДС неупругого рассеяния, которые применимы при описании рассеяния как в области осцилляций ДС, так и в подбарьерной области классически запрещенных траекторий, где ДС экспоненциально затухает. Вывод равномерной формулы для амплитуды рассеяния основан на использовании равномерного метода перевала [4], поэтому классические функции импульса, действия и угла отклонения, входящие в полученное выражение для амплитуды, следу-

ет вычислять в соответствующих точках перевала, которые задают зависимостью углового момента количества движения J от угла рассеяния.

В работе впервые выполнен полный анализ движения точек перевала как в области осцилляций, так и в области подбарьерных переходов.

В заключении главы приведена равномерная по энергии формула для полного сечения рассеяния.

$$\sigma_{if} = \sigma_{if}^L \cdot \left[\hat{B}^{1/2} \Phi^2(-\hat{B}) + \hat{B}^{-1/2} \Phi'^2(-\hat{B}) \right], \quad (1)$$

которая совпадает с полуклассическим результатом Ландау σ_{if}^L в области энергий, существенно превосходящих пороговую, и в то же время правильно воспроизводит экспоненциальное затухание сечения при переходе в подпороговую область энергий. Здесь фазовая функция \hat{B} выражается через разность классических интегралов действия, набранных по начальному и конечному термам между точками поворота и точкой пересечения термов при нулевом значении углового момента, Φ, Φ' – функция Эйри – Фока и ее производная.

ВТОРАЯ ГЛАВА посвящена исследованию случая экспоненциального взаимодействия $V = V_0 \exp(-\gamma R)$ между двумя термами. Показано, что учет экспоненциального убывания взаимодействия с ростом межъядерного расстояния позволяет обобщить результаты предыдущей главы на случай непересекающихся термов. В то же время подобный учет приводит к необходимости рассмотрения системы, состоящей из двух связанных уравнений стационарности, первое из которых задает координаты точек перевала на комплексной плоскости межъядерного расстояния, а второе – на комплексной плоскости углового момента:

$$\begin{cases} (k_i - k_f)(R_{\pm}) = \pm i\gamma \\ \eta_{\pm}(J) = \theta, \end{cases} \quad (2)$$

здесь

$$\eta_{\pm}(J) = \pi - \{\chi_i(J, \infty) + \chi_f(J, \infty)\} \pm \{\chi_i(J, R_{\pm}) - \chi_f(J, R_{\pm})\}$$

есть классические функции отклонения, соответствующие неупругим переходам при сближении и разлете сталкивающихся частиц, обобщенные на случай экспоненциального взаимодействия,

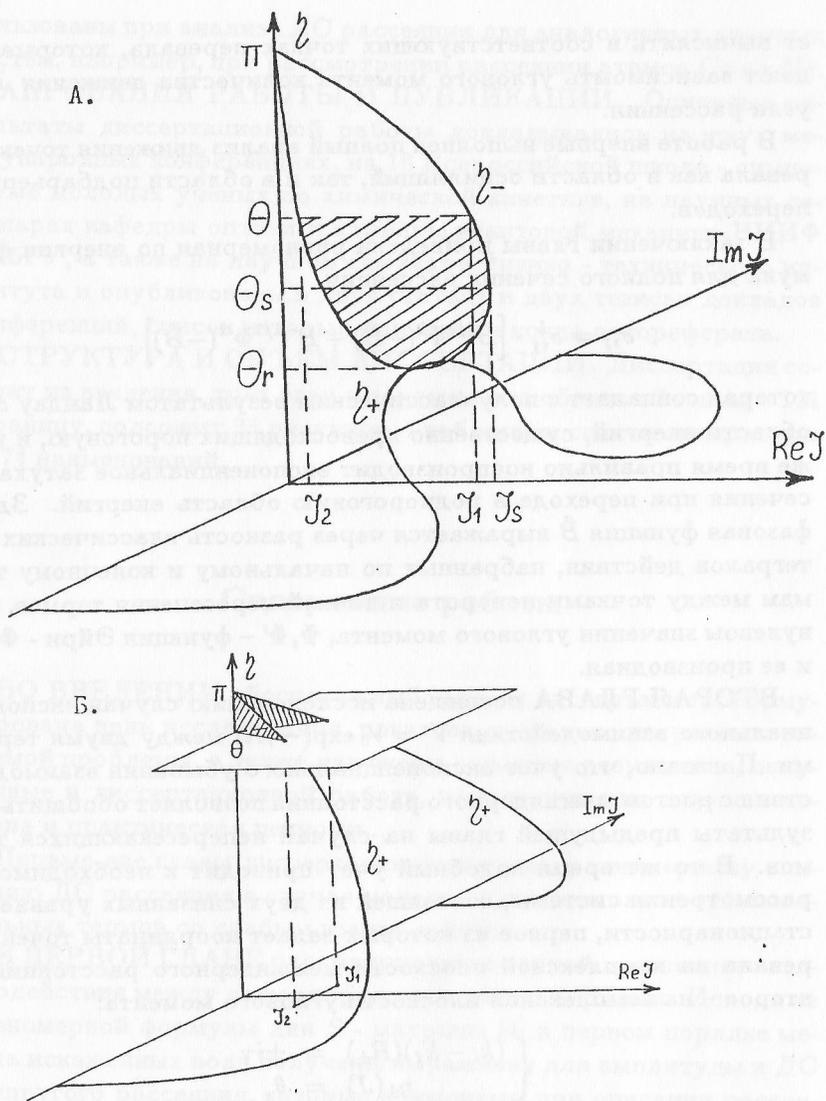


Рис.1. Качественная картина, демонстрирующая зависимость функций отклонения η_+ и η_- от комплексного углового момента J в тех точках, где функции отклонения вещественны: а – для случая, когда имеет место область осцилляций, б – для случая, когда ДС определяется исключительно классически запрещенными траекториями.

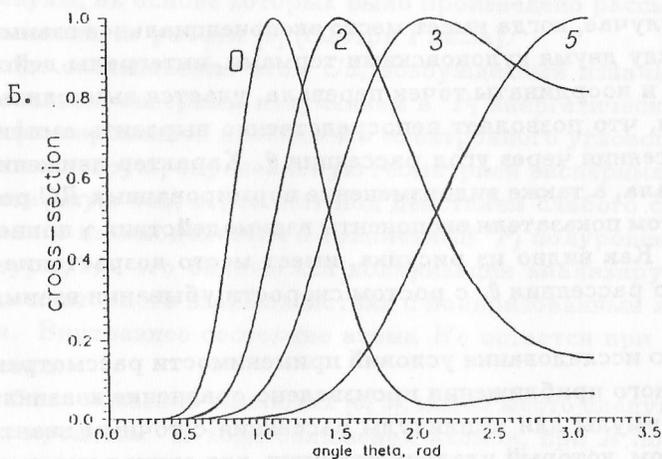
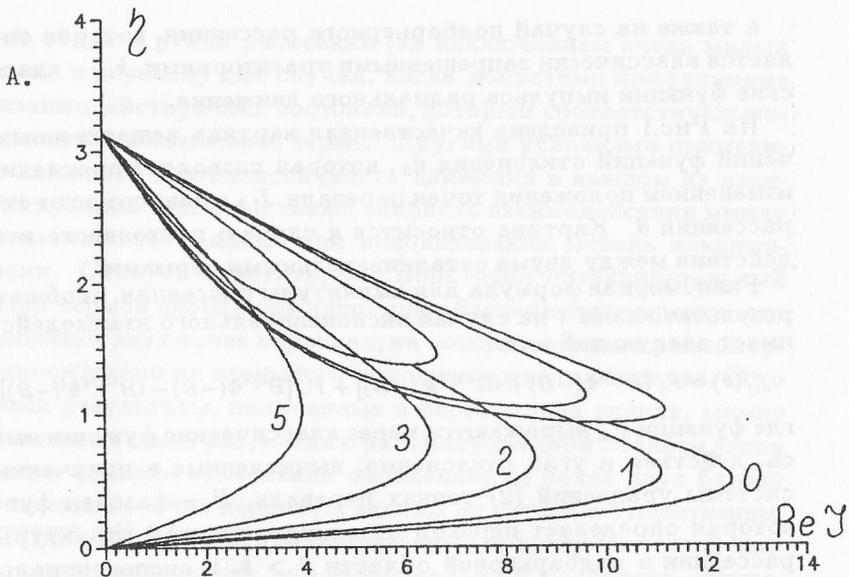


Рис.2: а) Зависимость функций отклонения η_+ и η_- от комплексного углового момента J в точках перевала $J_{1,2}$ (проекция на плоскость $\eta - \text{Re}J$). б) ДС рассеяния, нормированные на максимальное значение. Различным кривым отвечают различные показатели экспоненты взаимодействия γ .

а также на случай подбарьерного рассеяния, которое определяется классически запрещенными траекториями, $k_{i,f}$ – классические функции импульса радиального движения.

На Рис.1 приведена качественная картина вещественных значений функций отклонения η_{\pm} , которая позволяет проследить за изменением положения точек перевала $J_{1,2}$ в зависимости от угла рассеяния θ . Картина относится к случаю постоянного взаимодействия между двумя отталкивательными термами.

Равномерная формула для амплитуды рассеяния, обобщающая результат главы 1 на случай экспоненциального взаимодействия, имеет следующий вид:

$$f_{if}^{\pm}(\theta) = F_{+} [B^{1/4}\Phi(-B) + iB^{-1/4}\Phi'(-B)] + F_{-} [B^{1/4}\Phi(-B) - iB^{-1/4}\Phi'(-B)], \quad (3)$$

где функции F_{\pm} выражаются через классические функции импульса, действия и угла отклонения, вычисленные в полученных из системы уравнений (2) точках перевала, B – фазовая функция, которая определяет переход от осцилляционной структуры ДС рассеяния в надбарьерной области $\theta > \theta_r$ к экспоненциальному затуханию ДС в области классически запрещенных траекторий $\theta < \theta_r$.

В том случае, когда имеет место экспоненциальное взаимодействие между двумя кулоновскими термами, интегралы действия, равно как и координаты точек перевала, удастся вычислить аналитически, что позволяет непосредственно выразить амплитуду и ДС рассеяния через угол рассеяния θ . Характер движения точек перевала, а также видоизменение нормированных ДС рассеяния с ростом показателя экспоненты взаимодействия γ приведены на Рис.2. Как видно из рисунка, имеет место возрастание угла радужного рассеяния θ_r с ростом скорости убывающа взаимодействия.

С целью исследования условий применимости рассмотренного равномерного приближения произведено сравнение квазиклассической формулы для амплитуды рассеяния с точным квантовым результатом, который удалось получить для случая кулоновских потенциалов. Сравнение демонстрирует точную аппроксимацию квантового результата равномерным квазиклассическим выражением как в области осцилляций ДС, так и в области подбарьерных переходов.

Таким образом, в первых двух главах диссертации развит метод, который позволяет вычислять амплитуду и ДС рассеяния

во всей области углов рассеяния (за исключением очень малых и близких к π углов) для случая, когда допустимо приближение двух взаимодействующих состояний, которым соответствуют монотонно отталкивательные термы. Другими условиями применимости являются квазиклассичность движения в каждом из взаимодействующих термов, а также слабость взаимодействия между состояниями, необходимая при использовании метода искаженных волн. Следует отметить, что монотонно отталкивательный характер термов необходим лишь для обеспечения корректности приближения двух точек перевала, на котором основан равномерный относительно их взаимного положения метод перевала. В то же время результаты, полученные в первых двух главах, можно использовать всякий раз, когда в рассматриваемой области углов рассеяния функция отклонения определяет не более двух близко расположенных точек перевала, вклады от которых существенны.

В ТРЕТЬЕЙ ГЛАВЕ приведен полный полуклассический анализ процесса неупругого дифференциального рассеяния оптически ориентированных атомов $Ca^*(4s5p, ^1P_1)$ на He . Термы квазимолекулы, на основе которых было произведено рассмотрение, заимствованы из работы [5] (смотри Рис.3а).

В ходе столкновения атом Ca , возбужденный изначально поляризованным лазерным излучением в 1P_1 энергетическое состояние с фиксированной проекцией ν электронного углового момента j на некоторую, определяемую геометрией эксперимента, пространственную ось, переходит под действием слабого спин - орбитального взаимодействия в триплетный 3P_j подуровень тонкой структуры, где его оптическая поляризация анализируется при помощи повторного взаимодействия с поляризованным лазерным светом. Внутреннее состояние атома He остается при этом без изменения.

Как было показано в работах [6, 5], имеет место следующая динамика процесса. В ходе сближения атомов, при R порядка 20 а.е., происходит заселение $^1\Pi$ квазимолекулярного терма, далее, возможны два пути перехода на триплетный $^3\Sigma$ терм, происходящего в окрестности точки ландау - зинеровского пересечения $^3\Sigma$ и $^1\Pi$ термов: либо переход происходит при сближении, и тогда при $R < R_{LZ}$ развитие системы протекает по $^3\Sigma$ терму, либо переход происходит при разлете, и тогда в области малых R развитие протекает по $^1\Pi$ терму. Функции отклонения, соответствующие

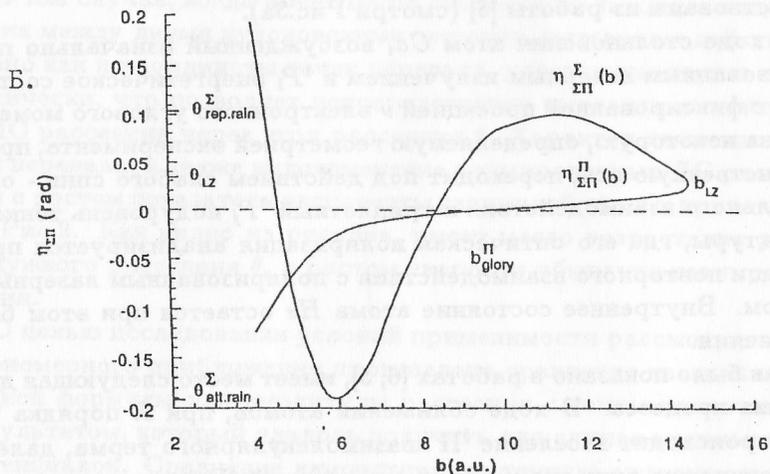
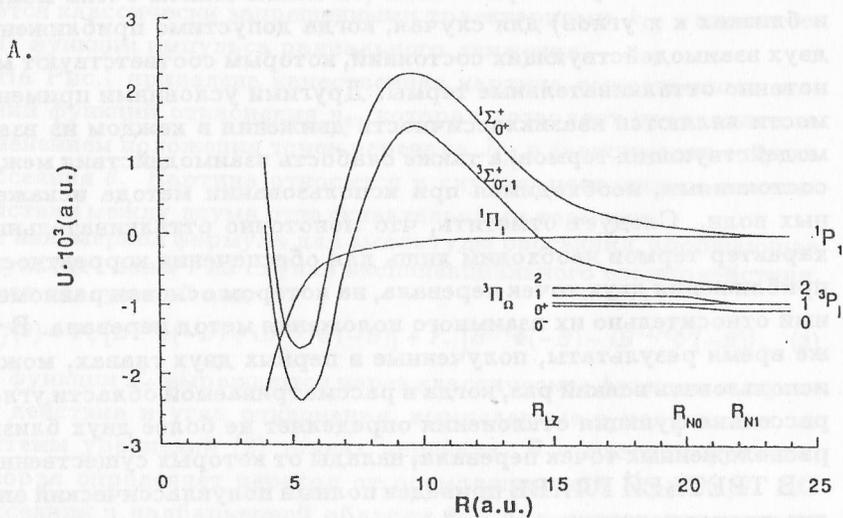


Рис.3: а) Термы квазимолекулы $Ca^*(4s5p)-He$. б) Функции отклонения: η^{Σ} отвечает движению при $R < R_{LZ}$ по $^3\Sigma$ терму, η^{Π} — по $^1\Pi$ терму.

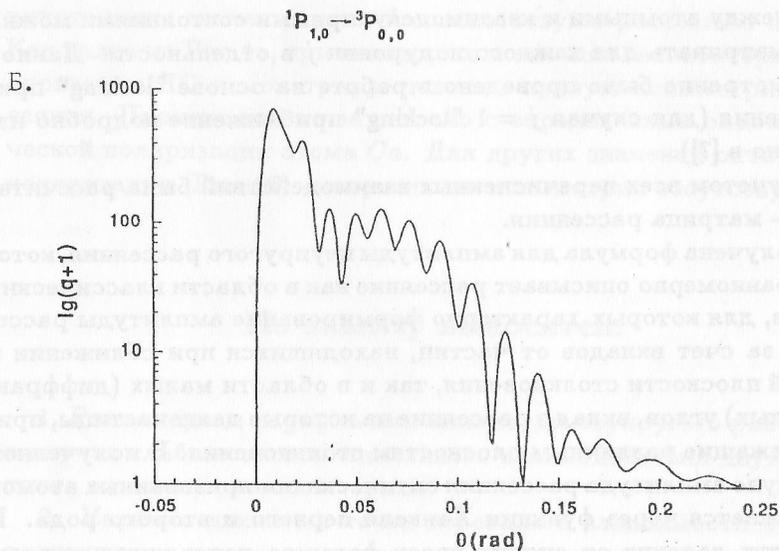
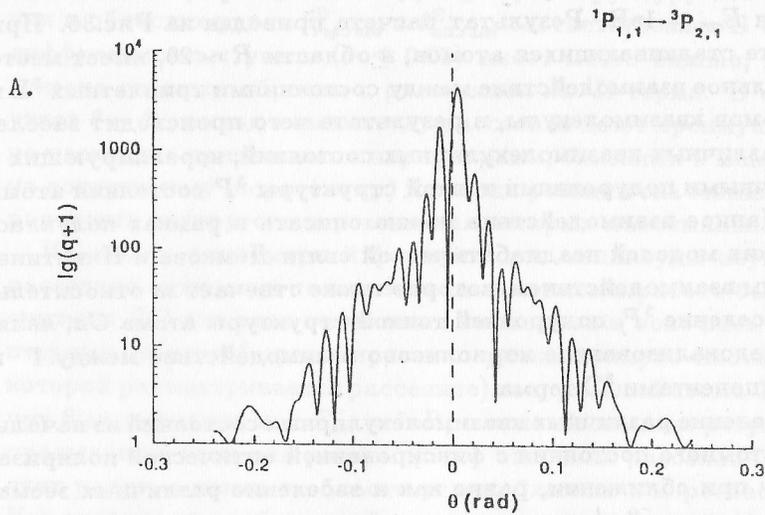


Рис.4. ДС рассеяния оптически поляризованных атомов Ca на He, рассчитанные при энергии столкновения $E_{cm} = 1eV$.

указанным путем перехода на триплетный терм, были вычислены для $E_{cm} = 1\text{эВ}$. Результат расчета приведен на Рис.36. При разлете сталкивающихся атомов, в области $R \sim 20$, имеет место радиальное взаимодействие между состояниями триплетных $^3\Sigma$ и $^3\Pi$ термов квазимолекулы, в результате чего происходит заселение различных квазимолекулярных состояний, коррелирующих с различными подуровнями тонкой структуры 3P состояния атома Ca . Данное взаимодействие можно описать в рамках полуклассических моделей неадиабатической связи Демкова и Никитина. Другим взаимодействием, которое также отвечает за относительное заселение 3P ; подуровней тонкой структуры атома Ca , является нелокализованное кориолисово взаимодействие между 1^- и 0^- компонентами $^3\Sigma$ терма.

Заселение различных квазимолекулярных состояний из начального атомного состояния с фиксированной оптической поляризацией ν при сближении, равно как и заселение различных зеемановых состояний ν' из некоторого квазимолекулярного состояния при разлете, происходит в результате дальнедействующего кориолисова взаимодействия при $R \geq 20$. Указанное перераспределение между атомными и квазимолекулярными состояниями можно рассматривать для каждого подуровня j в отдельности. Данное рассмотрение было проведено в работе на основе "locking" приближения (для случая $j = 1$ "locking" приближение подробно изложено в [7]).

С учетом всех перечисленных взаимодействий была рассчитана S - матрица рассеяния.

Получена формула для амплитуды неупругого рассеяния, которая равномерно описывает рассеяние как в области классических углов, для которых характерно формирование амплитуды рассеяния за счет вкладов от частиц, находящихся при сближении в одной плоскости столкновения, так и в области малых (диффракционных) углов, вклад в рассеяние на которые дают частицы, принадлежащие различным плоскостям столкновения. В полученной формуле амплитуда рассеяния оптически поляризованных атомов выражается через функции Ханкеля первого и второго рода. В области далеких от сиюминутных углов формула переходит в известный результат для амплитуды поляризационного рассеяния [8].

Как видно из Рис.36, функция отклонения η^Σ имеет максимум и минимум, которые связаны с максимумом и минимумом на $^3\Sigma$

терме и которые определяют радужную структуру ДС рассеяния в областях углов $\theta_{rep,rain}^{\Sigma}$ и $\theta_{att,rain}^{\Sigma}$ соответственно. В области диффракционных углов ($\theta \leq 0.03$) имеет место сияние, которое связано главным образом с рассеянием на ${}^1\Pi$ терме. В области углов $\theta \sim \theta_{LZ}$ вклад в амплитуду рассеяния дают преимущественно частицы с прицельными параметрами, близкими к максимально допустимому (пороговому) для хода реакции значению b_{LZ} , вероятность неупругого перехода для которых максимальна.

На основе равномерной формулы для амплитуды неупругого рассеяния оптически поляризованных атомов в работе были рассчитаны ДС для всех возможных начальных и конечных геликоптерных (вектор \mathbf{j} ориентирован перпендикулярно плоскости, в которой рассматривается рассеяние) поляризаций атома Ca . Расчет был выполнен для $E_{cm} = 1\text{эВ}$, с использованием результатов предыдущих глав для равномерного описания рассеяния в областях радуг, а также в области углов, близких к пороговому θ_{LZ} . Как следует из соображений симметрии, отличными от нуля оказываются только восемь независимых сечений. Два из них, с характерной осцилляционной структурой, приведены на Рис.4. Отрицательные значения угла θ соответствуют рассеянию налево. Как видно из Рис.4а, при некоторых значениях геликоптерной поляризации ДС демонстрируют лево - правую асимметрию рассеяния. Происхождение ее связано с определенным видом оптической поляризации атома Ca . Для других значений оптической поляризации (Рис.4б) азимутальная асимметрия отсутствует.

На защиту выносятся:

1. Равномерная формула для амплитуды неупругого рассеяния в случае слабого экспоненциального взаимодействия двух монотонно отталкивательных термов.

2. Картина движения точек перевала в зависимости от угла рассеяния, а также от параметра экспоненты взаимодействия. Вид функции отклонения в случае экспоненциального взаимодействия.

3. Равномерная формула для ДС рассеяния в случае экспоненциального взаимодействия двух кулоновских термов, структура ДС.

4. Равномерная формула для полного сечения рассеяния в случае слабого постоянного взаимодействия двух пересекающихся монотонно отталкивательных термов.

5. Равномерная формула для амплитуды неупругого рассеяния оптически поляризованных атомов, применимая для описания рассеяния как в области малых, так и в области классических углов.

6. Полуклассический анализ процесса изменения спина в ходе неупругого дифференциального рассеяния оптически ориентированных атомов $Ca^*(4s5p, {}^1P_1)$ на $He({}^1S_0)$: влияние начальной оптической поляризации на заселение различных зеемановых состояний, соответствующих трем подуровням тонкой структуры конечного 3P терма атома Ca .

7. Расчет ДС указанного процесса в случае геликоптерной поляризации атомов Ca , выполненный для энергии столкновения $E_{cm} = 1\text{eV}$. Расчет функций отклонения для движений по ${}^3\Sigma$ и ${}^1\Pi$ термам квазимолекулы. Анализ связи между особенностями структуры ДС и видом квазимолекулярных термов.

8. Количественный анализ лево - правой азимутальной асимметрии рассеяния на основе "locking" приближения.

ОСНОВНЫЕ МАТЕРИАЛЫ ДИССЕРТАЦИИ опубликованы в работах:

1. А.З.Девдариани, Е.А.Чесноков "Поправка к времени движения и углу рассеяния при возмущении потенциала". Вестник СПбГУ, Сер.4, N.4(25), С.68-71. (1994)

2. A.Z.Devdariani, E.A.Tchesnokov, E.I.Dashevskaya, E.E.Nikitin "Quasiclassical study of differential inelastic scattering of oriented $Ca(4s5p{}^1P_1)$ atoms on He ". Report Nr.20/97 der Forschungsgruppe INTERACTION OF ORIENTED MOLECULES am Zentrum fuer interdisziplinare Forshung der Universitaet Bielefeld (1996/1997), Wellenberg 1, D-33615 Bielefeld.

3. A.Z.Devdariani, E.A.Tchesnokov, E.I.Dashevskaya, E.E.Nikitin "The inelastic scattering of polarized Ca on He . Mechanisms of transitions

and differential cross-sections". 29 EGAS BERLIN, Abstracts, FRP 046 (1997)

4. A.Z.Devdariani, E.A.Tchesnokov "Uniform description of inelastic atomic scattering in the case of weak interaction between two quasimolecular states". 20 ICPEAC, Vienna, Abstracts, V.2, TU 181 (1997)

Цитированная литература:

- [1] J.P.Visticot, P.de Pujo, O.Sublemontier et.al. // Phys.Rev.A. 1992. V.45. N 9. P.6371-6378.
- [2] C.J.Smith, J.P.Driessen, L.Elo and S.R.Leone // J.Chem.Phys. 1992. V.96. N 11. P.8212-8224.
- [3] Ф.А.Елисенков, В.К.Никулин // ЖЭТФ. 1973. Т.64. Вып.1. С.122-128.
- [4] А.З.Левдариани // ЖЭТФ. 1989. Т.96. Вып.2. С.472-486.
- [5] А.З.Левдариани, А.Л.Загребин, М.Г.Леднев // Оптика и спектр. 1988. Т.65. Вып.3. С.514-522.
- [6] А.З.Левдариани, А.Л.Загребин // Хим. физика. 1986. Т.5. N 2. С.147-155.
- [7] E.I.Dashevskaya, E.E.Nikitin // J.Chem.Soc.Faraday trans. 1993. V.89. N 10. P.1567-1571.
- [8] E.I.Dashevskaya, F.Masnou-Seeuws, E.E.Nikitin // J.Phys.B. 1996. V.29. N 3. P.395-414.