

01

## Модуляция сигнала квантовых биений при фотоионизации изотопов Хе в магнитном поле

© Е.А. Викторов<sup>1</sup>, П.Ю. Сердобинцев<sup>1</sup>, Н.Н. Безуглов<sup>1</sup>, К. Мичулис<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Кафедра оптики, Физический факультет, Санкт-Петербургский государственный университет, 190034 Санкт-Петербург, Россия

<sup>2</sup> Национальный исследовательский ядерный университет „МИФИ“, 115409 Москва, Россия

e-mail: eaviktorov@yandex.com

Поступила в редакцию 29.04.2022 г.

В окончательной редакции 19.09.2022 г.

Принята к публикации 23.09.2022 г.

В наших недавних работах рассматривались процессы фотоионизации поляризованных атомов Хе во внешнем магнитном поле фемтосекундными импульсами. Было установлено, что наблюдаемая модуляция фотоэлектронного сигнала квантовых биений для Хе не может быть объяснена эффектом Пашена-Бака для уровней тонкой структуры. В настоящей работе те же квантовые биения получены при регистрации ионов Хе<sup>+</sup>. Сравнение сигналов различных изотопов Хе<sup>+</sup> в масс-спектре показало, что модуляция квантовых биений обусловлена сверхтонкой структурой зеемановских компонент изотопов <sup>129</sup>Хе и <sup>131</sup>Хе.

**Ключевые слова:** квантовые биения, сверхтонкая структура, эффект Зеемана, двухфотонное возбуждение, фемтосекундная ионизация, „pump-probe“-эксперимент.

DOI: 10.21883/OS.2022.11.53766.3447-22

### Введение

Изучение флуоресценции при возбуждении атомов поляризованным светом позволяет существенным образом расширить как возможности методов оптической диагностики газовых сред [1], так и сферу их применения в различных прикладных задачах [2]. Однако вместо анализа сигналов флуоресценции иногда более предпочтительным может оказаться исследование сигналов фототока, вызванного процессами фотоионизации возбужденных состояний. Возможность почти 100% эффективности регистрации фотоэлектронов обеспечивает более сильные ответные сигналы, образуемые при фотоионизации поляризованных атомов [3], с открывающейся поэтому перспективой наблюдения весьма тонких физических эффектов, обусловленных выстраиванием или/и ориентацией [3,4] газовых сред за счет, например, оптической накачки [5]. В настоящей работе используется метод „pump-probe“ для исследования состояния  $5p^5(^2P_{3/2})6p[3/2]_2$  ( $79212.5 \text{ cm}^{-1}$ ) изотопов Хе в сверхзвуковом пучке. Указанный метод использовался в предыдущих наших работах, полное описание экспериментальной установки которых, включая метод „pump-probe“, приведено в работе [6]. Ранее, применяя схожую схему эксперимента, мы наблюдали модуляцию сигнала квантовых биений при фотоионизации Хе [7] и показали, что природа данной модуляции не может быть обусловлена квадратичным эффектом Пашена-Бака. Последний (для используемых величин внешнего магнитного поля порядка 1 Т) оказывается слишком слабым на фоне тонкого расщепления квантовых состояний [7]. Здесь мы экспериментально демонстрируем, что модуляция сигнала

квантовых биений наблюдается только для нечетных изотопов Хе и обусловлена сверхтонкой структурой возбужденных уровней.

### Фотоионизация атомных состояний как элемент оптической диагностики

Важно отметить, что в общепринятом подходе по исследованию процессов ионизации анализируется зависимость наблюдаемого фототока  $I(t, \theta)$  от угла  $\theta$  между лазерным лучом и выходящими фотоэлектронами. Первая работа [8], в которой исследуется интерференция состояний сверхтонкой структуры натрия по характеру углового распределения электронов, была выполнена в 1978 г. Немного позже авторам работы [9] удалось зафиксировать эффекты квантовых биений в угловом распределении электронов при однофотонном когерентном возбуждении уровней сверхтонкой структуры натрия с последующей однофотонной ионизацией пробным импульсом. В публикации 1983 г. [10] по записи углового распределения фотоэлектронов определены оптические характеристики лития: отношение радиальных матричных элементов для переходов из  $6p$ -состояния в состояния с  $l = 0$  и  $l = 2$ , а также фазовые сдвиги для электронов континуума.

Сообщение о квантовых биениях в интегральной интенсивности фототока при фотоионизации уровней тонкой структуры натрия было сделано в 1979 г. Леушсем и Волтером [11] для высоколежащих  $^2D$ -состояний натрия с указанием на выявленную зависимость контрастности биений от взаимной ориентации линейной поляризации

двух возбуждающих импульсов лазера. В последующие годы появился ряд публикаций по исследованию квантовых биений в сигналах фотоионизации высоковозбужденных ридберговских состояний. В качестве примера приведем работу 1988 г. Волде и др. [12], в которой реализовано возбуждение с последующей ионизацией пикосекундным лазером атомов рубидия. Обоснование особенностей наблюдаемых биений в фототоках сделано в рамках квазиклассического приближения при моделировании волновых функций как волновых пакетов, вращающихся вокруг атомного остова.

Появление фемтосекундных и аттосекундных лазеров стимулировало дальнейший интерес исследователей к изучению физики квантовых биений. В одной из ранних работ с использованием фемтосекундного лазера [13] сообщалось о резонансном возбуждении и последующей ионизации молекул натрия. Авторам работы удалось создать когерентную суперпозицию колебательных состояний молекулы и наблюдать в фототоке молекулярных ионов проявление квантовой интерференции этих состояний. В более поздней публикации 2000 г. [14] использование фемтосекундного лазера позволило наблюдать квантовые биения с периодом 580 fs для тонкой структуры  $4p$ -состояния калия.

В работе 2010 г. Мауритссона [15] предложена инновационная методика по изучению процессов интерференции связанных состояний атома гелия. Возбуждение основного состояния гелия осуществлялось аттосекундным импульсом с длиной волны, соответствующей энергии ионизации атома гелия. У аттосекундных импульсов аномально большая спектральная ширина в силу соотношения неопределенности времени и энергии  $\Delta t \cdot \Delta E \geq \hbar$ . Это позволяет одновременно когерентно заселять как связанные состояния, так и состояния континуума атома гелия. Дальнейшая ионизация связанных ридберговских состояний инфракрасным фемтосекундным импульсом, синхронизированным с аттосекундным импульсом, приводит к интерференции первично и вторично возбужденных состояний континуума, что проявляется в виде квантовых биений во временных зависимостях энергетического спектра фотоэлектронов.

В работе 2018 г. Форбса и др. [16] эффекты интерференции атомных состояний предлагается исследовать в рамках методики спектроскопии квантовых биений (QBS), когда сами биения наблюдаются в фотоэлектронном изображении. Обоснование применимости методики QBS для изучения тонкого расщепления в атомах благородных газов и атомов щелочных металлов основано на совпадении наносекундных и пикосекундных временных масштабов эксперимента с временами жизни и величинами обратных частотных интервалов, характерных для тонкой структуры. В работе построены фотоэлектронные изображения, так называемые изображения углового распределения фотоэлектронов (PAD), для разных значений времени задержки. Из полученных экспериментальных данных найдены различные константы тонкого и сверхтонкого расщепления, магнитная

дипольная константа  $A$  и электрическая квадрупольная константа  $B$  для состояния  $(^2P_{1/2}^0)6s^2[1/2]_0$  ксенона.

В наших предыдущих работах сообщалось об осциллирующих электронном фототоке, которые обусловлены интерференцией зеемановских компонент квантового подуровня  $(^2P_{3/2})6p[3/2]_2$  тонкой структуры ксенона. В настоящей работе мы исследуем осцилляции ионного фототока, возникшие вследствие когерентного возбуждения зеемановских подуровней сверхтонкой структуры  $(^2P_{3/2})6p[3/2]_2$  изотопов ксенона.

## Экспериментальная установка

Пучок монокинетических атомов ксенона естественного изотопного состава создается в сверхзвуковой струе. Эти атомы коротким импульсом излучения ( $\tau = 60$  fs,  $\lambda = 252.5$  nm) двухфотонно возбуждаются в состояние  $5p^5(^2P_{3/2})6p[3/2]_2$  ( $79212.5$  cm<sup>-1</sup>). Направление магнитных моментов ( $J = 2$ ) возбужденных атомов задается поляризацией излучения накачки. Возбуждение происходит в зоне взаимодействия электронного времяпролетного спектрометра типа „магнитная бутылка“, т.е. в вертикальном магнитном поле  $\sim 0.8$  Т. С момента возбуждения начинается прецессия магнитных моментов возбужденных атомов в магнитном поле  $\mathbf{B}$  с угловой частотой  $\omega_L = g\gamma_0\mathbf{B}$ , где  $g$  — фактор Ланде, а  $\gamma_0 = 0.88 \cdot 10^{11}$  rad·s<sup>-1</sup>·T<sup>-1</sup>. Ионизация возбужденных атомов производится импульсом излучения ( $\tau = 50$  fs,  $\lambda = 795$  nm) также двухфотонно с использованием регулируемой задержки. В электронном спектрометре регистрируются электроны с энергией  $6536$  cm<sup>-1</sup>, соответствующие двухфотонной ионизации возбужденных атомов, а также электроны с энергией  $20985$  cm<sup>-1</sup>, соответствующие трехфотонной ионизации атомов ксенона излучением накачки. Эти электронные пики имеют примерно равную интенсивность. На зависимости сигнала ионизации возбужденных атомов от задержки наблюдаются квантовые биения, связанные с зеемановским расщеплением уровня в магнитном поле. На этой периодической структуре наблюдается модуляция, для выяснения природы которой был проведен следующий эксперимент. Вместо регистрации электронов производилась регистрация положительных ионов Хе<sup>+</sup>. Они выталкивались электрическим полем из зоны взаимодействия в короткий времяпролетный масс-спектрометр, который позволял различать изотопы ксенона. Магнитное поле при этом не выключалось. Зависимость масс-спектра от задержки представлена на рис. 1, а. Следует отметить, что ионный сигнал представляет собой сумму обоих процессов ионизации, поэтому глубина модуляции сигнала квантовых биений меньше, чем при регистрации электронов.

В данном эксперименте использовались горизонтальные поляризации импульсов излучения, и квантовые биения происходили на удвоенной ларморовой частоте. Для состояния  $5p^5(^2P_{3/2})6p[3/2]_2$  ксенона частота

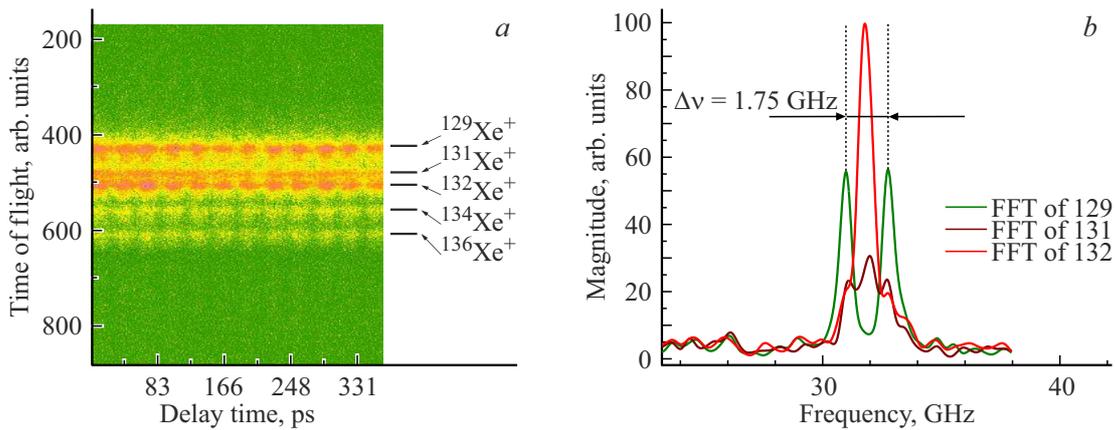


Рис. 1. *a* — масс-спектр изотопов Хе<sup>+</sup> в зависимости от времени задержки; *b* — фурье-спектр сигналов ионизации изотопов Хе<sup>+</sup>.

та квантовых биений  $\nu_b = 2\omega_L/2\pi \approx 32 \text{ ns}^{-1}$  (период  $T_b = 1/\nu_b \approx 31.42 \text{ ps}$ ) (рис. 1) [17].

Модуляция сигнала квантовых биений (МСБ) изотопов Хе с четными массами 132, 134, 136 не наблюдается. Для изотопов с четными массами в отличие от изотопов с нечетными массами частотная компонента квантовых биений фурье-спектра не расщеплена (рис. 1, *b*). Фурье-спектры парциальных сигналов от каждого изотопа дают возможность определять круговую частоту квантовых биений  $\omega_b$  совместно с круговыми частотами их модуляции  $\omega_m = 2\pi\Delta\nu$  для различных изотопов ксенона (рис. 1, *b*). Хорошо наблюдаемые модуляции сигналов квантовых биений присущи нечетным изотопам <sup>129</sup>Хе и <sup>131</sup>Хе. Ядра этих нечетных изотопов обладают магнитным моментом 1/2 и 3/2 соответственно в отличие от четных изотопов, у которых момент ядра нулевой.

Отметим, что уменьшение магнитного поля в два раза приводит к двукратному уменьшению частоты биений для изотопов Хе: со значения  $32 \text{ ns}^{-1}$  до величины  $16 \text{ ns}^{-1}$ . Изменений для частот модуляции сигналов изотопов не наблюдается. Например, частоты модуляции для изотопа <sup>129</sup>Хе для двукратно отличающихся значений магнитного поля оказываются равными 1.75 и 1.82 GHz, что находится в пределах погрешности эксперимента, равной  $\pm 0.05 \text{ GHz}$ . Погрешность определения частоты определяется ограниченным диапазоном задержек (3 ns) с коэффициентом 1/10. Данное обстоятельство дает дополнительное подтверждение наших предыдущих наблюдений [7] о несвязанности природы модуляции сигнала квантовых биений с эффектом Пашена-Бака для уровней тонкой структуры. При реализации последнего возникает характерная нелинейная зависимость  $\omega_m$  от величины магнитного поля [1,5,18] с преобладанием квадратичного члена, так что при уменьшении  $\nu_b$  в два раза следовало бы ожидать почти четырехкратного уменьшения  $\omega_m$ .

МСБ наблюдается в интегральном сигнале изотопов Хе<sup>+</sup> как результат МСБ изотопов Хе с нечетными

массами 129, 131. Отметим, что в природном ксеноне содержится почти 48% нечетных изотопов [19].

### Обсуждение экспериментальных результатов

Возникновение модуляции сигналов квантовых биений может быть объяснено сверхтонкой (СТ) структурой атомных уровней. Характер расщепления энергий зеемановских компонент в магнитном поле существенным образом зависит от значения спина *I* ядра, которое для изотопа <sup>129</sup>Хе равно  $I = 1/2$ . При наличии спина *I* в атоме необходимо учитывать дополнительное взаимодействие магнитного момента  $\mu_I$  ядра с моментом  $\mu_J$  электронной оболочки, а также с внешним магнитным полем **B**. В случае слабого поля величина полного момента **F** = **I** + **J** атома равна  $F = 3/2, 5/2$ , а энергия зеемановских подуровней  $M_F$  линейным образом зависит от *B* [2,18]:

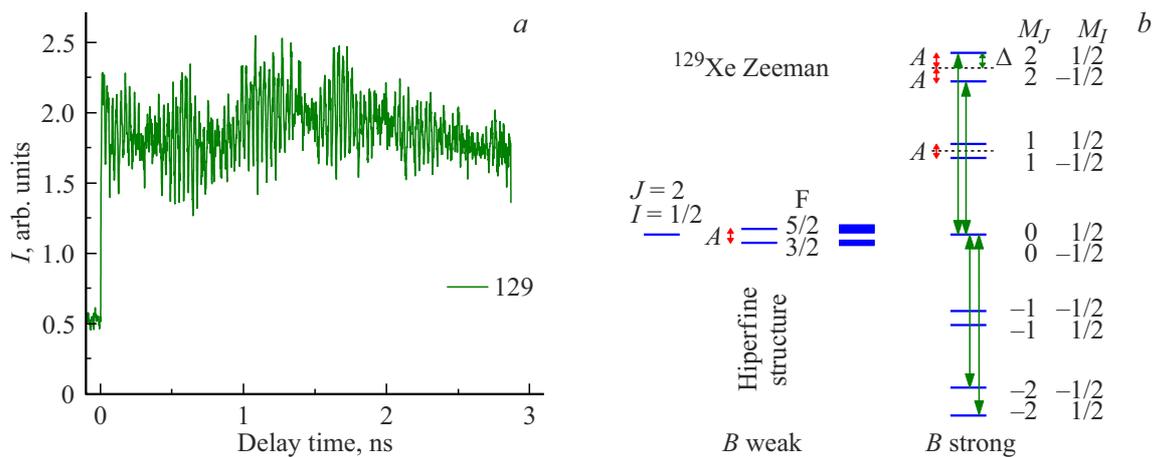
$$\epsilon_{m_F} = \mu_0 g_F M_F B, \quad M_F = -F, \dots, F. \quad (1)$$

Атомные состояния для значений *F*, равных 3/2 и 5/2, расщепляются на  $2F + 1$  подуровней, т.е. на четыре и шесть компонент соответственно (случай слабого поля на рис. 2, *b*).

Для случая сильного внешнего поля, энергия взаимодействия электронного момента  $\mu_J$  с которым превосходит СТ-взаимодействие между **I** и **J**, каждый подуровень  $M_J$  зеемановского электронного мультиплета расщепляется на  $2I + 1$  СТ-компонента [2] (случай сильного поля на рис. 2, *b*). Соответствующие величины сверхтонкого расщепления определяются соотношением (VIII.13) из работы [18]:

$$\delta W = 2\Delta, \quad \Delta = A M_J M_I, \quad (2)$$

где  $A = 0.02976 \text{ cm}^{-1} = 0.893 \text{ GHz}$  — константа магнитодипольного взаимодействия для изотопа <sup>129</sup>Хе [20],  $M_J, M_I$  — проекции момента электронной оболочки



**Рис. 2.** *a* — зависимость сигнала ионизации изотопа  $^{129}\text{Xe}$  от задержки; *b* — сверхтонкая структура изотопа  $^{129}\text{Xe}$  в слабом и сильном магнитном поле.

и ядра на ось квантования, ориентированной вдоль магнитного поля.

В данном эксперименте с помощью двухфотонного возбуждения излучением горизонтальной поляризации изотоп  $^{129}\text{Xe}$  переводится в суперпозицию двух состояний зеемановских компонент со значениями проекции  $M_J = \pm 2$  (зеленые линии на рис. 2, *b*). Соответствующее СТ-расщепление, согласно формуле (2), имеет значение  $2A = 1.786$  GHz. Эта величина приблизительно равна приведенным выше экспериментально измеренным частотам модуляции биений для изотопа  $^{129}\text{Xe}$ .

Для изотопа  $^{131}\text{Xe}$  СТ-расщепление несколько сложнее и здесь не рассматривается.

## Заключение

Экспериментально наблюдаемая модуляция сигналов квантовых биений в регистрируемых фототоках проявляется в парциальных сигналах изотопов  $\text{Xe}^+$  с нечетными массами 129, 131, в то время как подобная модуляция сигналов для изотопов с четными массами 132, 134, 136 отсутствует. В работе подробно рассмотрена модуляционная структура изотопа  $^{129}\text{Xe}$ . Проведенный нами анализ полученных закономерностей указывает, что для изотопов с ненулевым спином ядра модуляция наблюдаемых сигналов происходит на частоте, соответствующей сверхтонкому расщеплению. Возникновение самой модуляции обусловлено нелинейным эффектом Зеемана с участием подуровней СТС, когда внешние магнитные поля вызывают неэквидистантные сдвиги энергий зеемановских компонент. Поэтому если говорить о поведении величин второй и последующих гармоник в осцилляционных сигналах фототока, то их амплитуды нелинейным образом отслеживают рост магнитных полей. Подобная нелинейность упрощает регистрацию поляризационных моментов атомов высоких порядков в методиках, востребованных при конструировании квантовых магнито-

метров (FMNMOE) [21] и основанных на нелинейном магнитооптическом эффекте.

## Благодарности

Эксперимент выполнен с использованием оборудования Ресурсного центра СПбГУ „Физические методы исследования поверхности“.

## Финансирование работы

Настоящая работа поддержана грантом Латвийского научного совета (Latvian Science Council Grant № lzp-2019/1-0280).

## Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

## Список литературы

- [1] M. Auzinsh, D. Budker, S. Rochester. *Optically Polarized Atoms. Understanding Light-Atom Interactions* (Oxford University press, 2010).
- [2] E.B. Alexandrov, M.P. Chaika, G.I. Khvostenko. *Interference of Atomic States*. Springer Series on Atoms and Plasmas, v. 7 (Springer, Berlin, 1993).
- [3] N. Porfido, N.N. Bezuglov, M. Bruvelis, G. Shayeganrad, S. Birindelli, F. Tantussi, I. Guerri, M. Viteau, A. Fioretti, D. Ciampini, M. Allegrini, E. Arimondo, A. Ekers, F. Fuso. *Phys. Rev. A*, **92**, 043408 (2015). DOI: 10.1103/PhysRevA.92.043408
- [4] M. Bruvelis, A. Cinins, A. Leitis, D.K. Efimov, N.N. Bezuglov, A.S. Chirtsov, F. Fuso, A. Ekers. *Opt. Spectrosc.*, **119**, 1038 (2015). DOI: 10.1134/S0030400X1512005X
- [5] I. Sydoryk, N.N. Bezuglov, I.I. Beterov, K. Miculis, E. Saks, A. Janovs, P. Spels, A. Ekers. *Phys. Rev. A*, **77**, 042511 (2008). DOI: 10.1103/PhysRevA.77.042511

- [6] E.A. Viktorov, A.A. Pastor, P.Yu. Serdobintsev, N.N. Bezuglov. *Opt. Spectrosc.*, **129**, 1238 (2021). DOI: 10.1134/S0030400X21090216
- [7] E.A. Viktorov, M.S. Dimitrijević, V.A. Srećković, N.N. Bezuglov, K. Miculis, A.A. Pastor, P.Yu. Serdobintsev. *Eur. Phys. J. D*, **75**, 174003 (2021). DOI: 10.1088/1742-6596/2086/1/012174
- [8] M.P. Strand, J. Hansen, R.-L. Chien, R.S. Berry. *Chem. Phys. Lett.*, **59**, 205 (1978). DOI: 10.1016/0009-2614(78)89079-4
- [9] G. Leuchs et al. *Opt. Commun.*, **31**, 313 (1979). DOI: 10.1016/0030-4018(79)90204-9
- [10] R.-L. Chien, O.C. Mullins, R.S. Berry. *Phys. Rev. A*, **28**, 2078 (1983). DOI: 10.1103/PhysRevA.28.2078
- [11] G. Leuchs, H. Walther. *Z. Physik A*, **293**, 93 (1979). DOI: 10.1007/BF01559750
- [12] A. ten Wolde, L.D. Noordam, A. Lagendijk, H.B. van Linden van den Heuvell. *Phys. Rev. Lett.*, **61**, 2099 (1988). DOI: 10.1103/PhysRevLett.61.2099
- [13] V. Engel, T. Baumert, C. Meier et al. *Z. Phys. D — Atoms, Molecules and Clusters*, **28**, 37 (1993). DOI: 10.1007/BF01437453
- [14] S. Zamith, M. Bouchene, E. Sokell et al. *Eur. Phys. J. D*, **12**, 255 (2000). DOI: 10.1007/s100530070020
- [15] J. Mauritsson, T. Remetter, M. Swoboda, K. Klünder, A. L’Huillier, K.J. Schafer, O. Ghafur, F. Kelkensberg, W. Siu, P. Johnsson, M.J.J. Vrakking, I. Znakovskaya, T. Uphues, S. Zherebtsov, M.F. Kling, F. Lépine, E. Benedetti, F. Ferrari, G. Sansone, M. Nisoli. *Phys. Rev. Lett.*, **105**, 053001 (2010). DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.053001
- [16] R. Forbes, V. Makhija, J.G. Underwood, A. Stolow, I. Wilkinson, P. Hockett, R. Lausten. *Phys. Rev. A*, **97**, 063417 (2018). DOI: 10.1103/PhysRevA.97.063417
- [17] E.A. Viktorov, K. Miculis, A.A. Pastor, P.Yu. Serdobintsev, N.N. Bezuglov. *Proc. SPIE*, **11770**, Nonlinear Optics and Applications XII, 117701O (2021). DOI: 10.1117/12.2591762
- [18] S.E. Frish. *Optical Atomic Spectra* [in Russian] (Fizmatgiz, 1963).
- [19] Britannica. The Editors of Encyclopaedia „xenon“. *Encyclopedia Britannica*, 16 May. 2021. <https://www.britannica.com/science/xenon>
- [20] D.A. Jackson, M.C. Coulombe. *Proc. R. Soc. Lond. A*, **335**, 1601 (1973). DOI: 10.1098/rspa.1973.0118
- [21] E.B. Alexandrov, M. Auzinsh, D. Budker, D.F. Kimball, S.M. Rochester, V.V. Yashchuk. *J. Opt. Soc. Am. B*, **22**, 7 (2005). DOI: 10.1364/JOSAB.22.000007