

## ИССЛЕДОВАНИЕ СПЕКТРА ФЛУОРЕСЦЕНЦИИ ПАРОВ ЦЕЗИЯ, ВОЗБУЖДАЕМОГО СВЕТОМ РЕЗОНАНСНЫХ ЛИНИЙ 852.1 ÷ 894.3 нм

А. Н. Ключарев и А. В. Лазаренко

Проведено исследование спектра объемной флуоресценции паров цезия в кювете, облучаемой светом газоразрядной цезиевой лампы. Концентрация возбужденных атомов  $6^2P$  в кювете определялась по методу поглощения линий диффузной серии. Показано, что при давлении цезия в кювете  $10^{-2}$  тор относительные заселенности подуровней тонкой структуры  $6^2P$ -уровня отличаются от равновесных. Приведена запись спектра флуоресценции цезия в области резонансной линии 894.3 нм, имеющего четко выраженную молекулярную структуру с длинноволновой стороны резонансной линии. В условиях эксперимента возможными каналами заселения  $6^2D$ -состояния может быть процесс передачи возбуждения при парных соударениях возбужденных атомов  $6^2P$   $2Cs6^2P \rightarrow Cs6^2D + Cs6^2S$ ,  $\Delta E \sim 300 \text{ см}^{-1}$ . Оценивается верхний предел эффективного сечения  $Q$  этого процесса  $Q_{эф.} \leq 1 \cdot 10^{-18} \text{ см}^2$ .

Из экспериментов по сенсibilизированной флуоресценции в парах металлов следует, что  $n^2P$ -уровни щелочных металлов возбуждаются ударами второго рода заметно слабее, чем  $n^2S$ - и  $n^2D$ -состояния при сравнимых величинах дефекта энергии. Отсюда приходится предположить либо малые вероятности соответствующих переходов, либо тушение возбужденных  $n^2P$ -состояний в условиях опытов [1, 2].

Эффективным методом селективного возбуждения  $n^2P$ -состояний может служить оптическое возбуждение, при котором кювета с парами облучается сбоку по всей длине светом от протяженного источника. Такая схема оптического возбуждения паров цезия светом фиолетового дублета 455.5 ÷ 459.3 нм была ранее использована одним из нас [3]. При использовании этого варианта метода оптического возбуждения оказывается возможным в значительной мере преодолеть трудности, связанные с учетом вторичных процессов типа пленения и реабсорбции излучения в объеме взаимодействия, и применить метод поглощения для определения абсолютных заселенностей уровней.

Мы провели экспериментальное исследование спектра объемной флуоресценции паров цезия в кювете облучаемой светом газоразрядной цезиевой лампы. При поглощении резонансных линий 852.1 ÷ 894.3 нм (более коротковолновая часть спектра оптической накачки  $\lambda \leq 500$  нм отсекалась фильтрами) заселялись первые возбужденные  $6^2P$ -состояния атома. Конструкция кюветы и методика определения концентрации на  $6^2P$ -уровнях по поглощению линий диффузной серии были описаны нами ранее в [4]. Для чисел  $f$  соответствующих переходов использовались расчетные данные из работы [5]. Используя известные соотношения для термодинамического равновесия, легко показать, что относительная заселенность подуровней  $6^2P$ -состояния при равновесном распределении атомов по энергетическим уровням и температуре стенок кюветы  $T = 528^\circ \text{ К}$   $N_{6^2P_{1/2}} : N_{6^2P_{3/2}} = 2.3$ . Очевидно, что эта равновесная относительная заселенность  $6^2P_{1/2, 3/2}$ -уровней в приосевых частях кюветы будет реализована при условии

$$N_0 \langle Qv \rangle \gg A_{эф.}, \quad (1)$$

где  $Q$  — эффективное сечение процесса перемешивания подуровней тонкой структуры ударами второго рода с невозбужденными атомами цезия,  $A_{\text{эфф.}}$  — эффективная вероятность излучательного перехода. Иначе говоря,  $\gamma = 2.3$ , если характерное время безызлучательного процесса перемешивания  $1 : N_0 \langle Qv \rangle$  много меньше эффективного времени жизни  $6^2P$ -

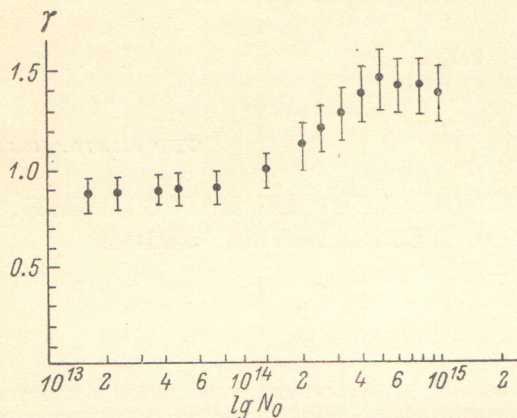


Рис. 1.

второго рода возрастает и при  $N_0 \geq 10^{15} \text{ см}^{-3}$  должна достигаться равновесная относительная концентрация  $\gamma = 2.3$ . В этом случае процессы переизлучения резонансных линий можно рассматривать как малые поправки при оценке равновесной концентрации. Таким образом, с ростом  $N_0$  следует ожидать монотонный характер изменения  $\gamma$  до установления равновесной концентрации, поскольку известный в литературе эффект увеличения прозрачности среды для плененного резонансного излучения, связываемый с холтсмарковским уширением контура линии, должен проявиться при значительно больших концентрациях  $N_0$  [7]. В предельном же случае малых давлений величина  $\gamma$  определяется в основном оптическими процессами поглощения и излучения. При достаточно больших  $x_0 R$  ( $x_0 R > 10^2$ ) величина  $A_{\text{эфф.}}$  слабо зависит от силы осциллятора перехода и соответствующие величины  $\gamma$  должны мало меняться с концентрацией нормальных атомов. Измеренная нами величина  $\gamma$  как функция концентраций  $N_0$  приведена на рис. 1. Видно, что в диапазоне  $10^{13} \text{ см}^{-3} < N_0 < 10^{14} \text{ см}^{-3}$ ,  $\gamma \approx \text{const}$ . При дальнейшем увеличении  $N_0$  начинает проявляться механизм перемешивания подуровней ударами второго рода, приводящий к увеличению  $\gamma$ , однако равновесная концентрация не достигается даже при  $N_0 \geq 10^{15} \text{ см}^{-3}$ .

В цезиевом паре, оптически возбуждаемом светом инфракрасных резонансных линий, возможен процесс ассоциативной ионизации, приводящий к образованию молекулярного иона и электрона. Средняя энергия таких электронов может заметно превосходить тепловую энергию нейтральных атомов цезия. В случае, если перемешивание  $6^2P$ -подуровней тонкой структуры частично происходит за счет соударений с электронами, следовало ожидать уменьшения относительной заселенности. Однако процесс перемешивания подуровней ударами второго рода с атомами (электро-

уровня с учетом пленения резонансного излучения. В случае доплеровского контура линии ( $x_0 R \leq 10^3$ )  $A_{\text{эфф.}}$  можно оценить по известной формуле Бибермана—Холстейна. При  $N_0 = 5 \times 10^{13} \text{ см}^{-3}$ ,  $A_{\text{эфф.}} = 5 \cdot 10^4 \text{ сек.}^{-1}$  соответствующая величина  $N_0 \times \langle Qv \rangle \approx 10^3 \text{ сек.}^{-1}$  [6]. По такой оценке следует, что вплоть до концентраций нормальных атомов  $10^{13} \div 10^{14} \text{ см}^{-3}$  относительная заселенность  $6^2P_{1/2, 3/2}$ -уровней в основном определяется процессами оптического возбуждения и излучения. С увеличением концентрации нормальных атомов роль ударов

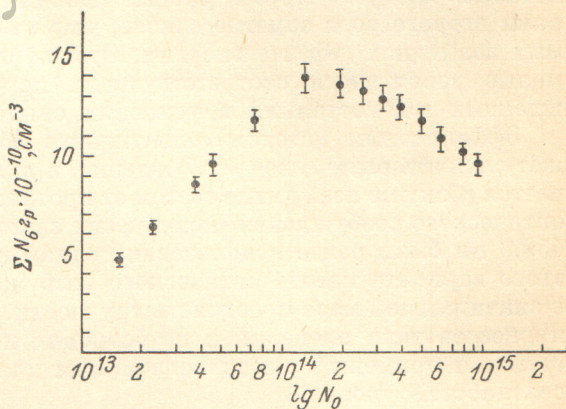


Рис. 2.

нами) не может объяснить наблюдаемое в эксперименте уменьшение заселенности резонансных состояний с увеличением давления цезия. На рис. 2 приведена зависимость суммарной заселенности уровней  $6^2P-N6^2P$  в приосевых частях кюветы от концентрации нормальных атомов цезия при постоянной мощности лампы накачки. По-видимому, можно предположить, что в условиях эксперимента при  $N_0 \geq 5 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$  начинает проявляться добавочный процесс, приводящий к уменьшению концентрации атомов цезия в  $6^2P$ -состоянии.

В принципе, наблюдаемые эффекты можно было бы связать с изменением распределения  $\gamma$  по радиусу кюветы при увеличении давления. Но это предположение нам кажется маловероятным, поскольку эффективное время жизни, а следовательно, и эффективность переноса плененного резонансного излучения для обоих компонент резонансного дублета сходным образом зависит от  $\kappa_0 R$ . Тушение резонансных уровней молекулами примеси также не может объяснить уменьшения эффективного времени жизни  $6^2P$ -уровней с увеличением давления, поскольку эффективность этого процесса не должна зависеть от  $N_0$  при больших концентрациях невозбужденных атомов цезия. В условиях эксперимента вероятными партнерами для возбужденных атомов цезия при тушащих процессах могут быть атомы (молекулы) цезия в основном состоянии. В качестве такого процесса можно рассмотреть, например, образование возбужденной молекулы при парных соударениях возбужденного и нормального атомов цезия, но в нашем случае эффективное сечение такого процесса пришлось бы предположить порядка  $10^{-14} \text{ см}^{-2}$ .

На рис. 3 приведена запись спектра флуоресценции вблизи резонансной линии 894.3 нм, сделанная на спектрометре ДФС-12 при концентрации нормальных атомов цезия  $N_0 = 8 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$ . Отчетливо видна молекулярная полоса с длинноволновой стороны резонансной линии, имеющая четко выраженную структуру. В спектре испускания и поглощения цезия подобная структура молекулярных полос вблизи первых резонансных линий, насколько нам известно, ранее не наблюдалась. Ее идентификация требует проведения дополнительных экспериментов. Можно предположить, что эффект резонансной флуоресценции молекулы  $\text{Cs}_2$ , возбуждаемой светом атомарной линии 894.3 нм с последующим переизлучением в частотах молекулярного спектра, является оптически разрешенным каналом для выхода плененного резонансного излучения, а следовательно, и фактором, уменьшающим заселенность резонансных уровней. В инфракрасной области спектра флуоресценции (рис. 3) максимум интегральной яркости смещен в длинноволновую сторону относительно положения резонансной линии 894.3 нм.

В спектре флуоресценции паров цезия, оптически возбуждаемых светом от цезиевой лампы с  $\lambda_{\text{мин.}} \geq 500 \text{ нм}$ , присутствуют довольно яркие линии побочных серий. На рис. 3 приведена, в частности, запись линий  $920.8 \div 876.1 \text{ нм}$  перехода  $6^2D-6^2P$ . В условиях эксперимента основным процессом заселения  $n^2D$ - и  $n^2S$ -уровней должен быть процесс ступенчатого оптического возбуждения из  $6^2P$ -состояния при поглощении линий соответствующих переходов — суммарная концентрация атомов в состоянии  $6^2P$  при  $N_0 = 10^{14} \text{ см}^{-3}$  составляет величину  $\sim 10^{11} \text{ см}^{-3}$ . Методом лучеиспускания было проведено измерение интенсивности ряда линий  $n^2S-6^2P$  и  $n^2D-6^2P$ -переходов в спектре флуоресценции. Как и следовало ожидать,

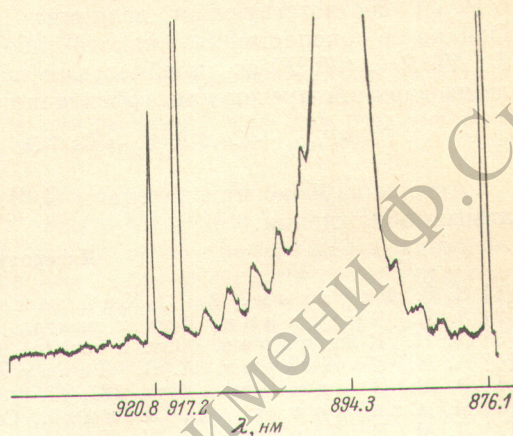


Рис. 3.

во всем исследованном диапазоне давлений, интенсивность линий побочных серий в спектре флуоресценции оказывается пропорциональна концентрации атомов на резонансных уровнях  $6^2P$ . Это обстоятельство, по нашему мнению, может быть дополнительным подтверждением того, что во всем исследованном интервале давлений, погрешность определения заселенности  $6^2P$ -уровней методом поглощения невелика и не превышает погрешности относительных измерений интенсивности линий флуоресценции ( $\leq 10\%$ ).

Особый интерес представляла для нас оценка интенсивности линии перехода  $6^2D-6^2P$  как функции заселенности  $6^2P$ -уровней, поскольку из энергетических соображений следует, что в условиях эксперимента возможным каналом заселения  $6^2D$ -состояния может быть процесс передачи возбуждения при парных соударениях возбужденных атомов в состояниях  $6^2P_{1/2, 3/2}$ ; соответствующая величина дефекта энергии  $\Delta E \approx 300 \text{ см}^{-1}$ . Однако в эксперименте какого-либо заметного отклонения функции  $I : N6^2P = f(N6^2P)$  от линейности не наблюдалось. Это позволило оценить лишь верхний предел для эффективного сечения процесса

$$\text{Cs } 6^2P_{1/2, 3/2} + \text{Cs } 6^2P_{1/2, 3/2} \rightarrow \text{Cs } 6^2D_{3/2, 5/2} + \Delta E, Q_{\text{эфф.}} \leq 1 \cdot 10^{-13} \text{ см}^2.$$

Авторы глубоко признательны С. Э. Фришу за интерес к работе и полезные обсуждения.

#### Литература

- [1] С. Г. Раутиан, А. С. Хайкин. *Опт. и спектр.*, 18, 722, 1965.
- [2] Э. К. Краулия. *Опт. и спектр.*, 18, 907, 1965.
- [3] А. Н. Ключарев. *Опт. и спектр.*, 24, 289, 1968.
- [4] А. Н. Ключарев, А. В. Лазаренко. *Опт. и спектр.*, 30, 1176, 1971.
- [5] P. M. Stone. *Phys. Rev.*, 127, 1151, 1962.
- [6] M. Czajkowski, L. Krause. *Can. J. Phys.*, 43, 1259, 1965.
- [7] Л. М. Биберман, Н. М. Гуревич. *ЖЭТФ*, 20, 108, 1950.

Поступило в Редакцию 30 июня 1971 г.