

## ВЛИЯНИЕ СООТНОШЕНИЯ МЕЖДУ ИНТЕНСИВНОСТЯМИ СВЕРХТОНКИХ КОМПОНЕНТ ВОЗБУЖДАЮЩЕГО СВЕТА НА СТОЛКНОВИТЕЛЬНУЮ ДЕПОЛЯРИЗАЦИЮ ФЛУОРЕСЦЕНЦИИ

В. Н. Ребане

На примере линий  $6^2D_{3/2} - 6^2P_j$  ( $j = 1/2, 3/2$ ) атома таллия  $Tl^{203, 205}$  теоретически изучена зависимость поляризации флуоресценции от контура возбуждающей линии и от давления. Путем решения кинетических уравнений для матрицы плотности показано, что сечения деполяризации существенно зависят от отношения интенсивностей компонент сверхтонкой структуры  $F_0$  основного состояния  $^2P_{1/2}$  ( $F_0 = 0$  или 1) в возбуждающем свете и от давления. В определенных условиях возбуждения повышение давления постороннего газа сопровождается повышением степени линейной поляризации флуоресценции. Эти особенности столкновительной деполяризации флуоресценции при наличии сверхтонкой структуры обусловлены сложным многоэкспоненциальным характером релаксации когерентности. В отсутствие сверхтонкой структуры сечения деполяризации не зависят ни от давления, ни от условий возбуждения флуоресценции.

В работе [1] была изложена общая теория столкновительной деполяризации (СД) флуоресценции атомных паров с учетом сверхтонкой структуры (СТС). Было показано, что столкновительная релаксация когерентности ансамбля возбужденных атомов определяется значением электронного момента  $j_1$ , ядерного спина  $i$  и  $2j_1$  постоянными релаксации  $\gamma$   $\times$  чисто-электронных мультипольных моментов  $\rho_q^x$  ( $x=1, 2, \dots, 2j_1$ ;  $q=-x, -x+1, \dots, x-1, x$ ), а также отношениями постоянных СТС  $A$  и  $B$  к постоянной затухания  $\Gamma_0$ .

Важной особенностью СД при наличии СТС является ее многоэкспоненциальный характер. Действительно, при отсутствии СТС распад круговой ( $x=1$ ) и линейной поляризации ( $x=2$ ) во времени описывается каждой одноэкспоненциальной функцией типа  $e^{-\gamma^x t}$ . В то же время при наличии СТС распад степеней поляризации описывается уже линейной комбинацией различных экспоненциальных функций, а коэффициенты линейной комбинации определяются условиями возбуждения флуоресценции. Поэтому СД при наличии СТС может существенно зависеть от условий возбуждения, в то время как в отсутствие СТС такой зависимости нет.

Целью настоящей работы является теоретическое исследование влияния, оказываемого на измеряемые в опытах по СД сечения деполяризации условиями возбуждения, а именно: возможным неравномерным распределением интенсивности возбуждающего света по компонентам СТС.

В качестве количественной характеристики поляризации типа  $K$  ( $K=1$  для круговой и  $K=2$  для линейной поляризации) примем степень поляризации  $\mathcal{P}^K$  по Борну [2].<sup>1</sup> Столкновительная деполяризация характеризуется тогда функциями

$$f^K(p) \equiv [\mathcal{P}^K(0) - \mathcal{P}^K(p)] / \mathcal{P}^K(p), \quad (1)$$

<sup>1</sup> Степени поляризации определяются как разности интенсивностей ортогональных поляризаций, отнесенные к суммарной интенсивности флуоресценции  $6^2D_{3/2} - 6^2P_j$ .

где  $\mathcal{P}^K(p)$  есть измеряемая при постоянной температуре  $T$  степень поляризации для давления  $p$  постороннего газа. Сечения деполяризации определяются из формулы

$$\mathcal{P}^K(p) = \mathcal{P}^K(0) \left/ \left[ 1 + \frac{nv\sigma^K}{\Gamma_0} \right] \right., \quad (2)$$

где  $n$  и  $v$  — числовая плотность атомов постороннего газа и их средняя скорость относительно атомов исследуемого вещества. Выразим с помощью (1) и (2) сечения деполяризации через функции  $f^K(p)$

$$\sigma^K = (kT\Gamma_0/v) \frac{1}{p} f^K(p) \quad (k — постоянная Больцмана). \quad (3)$$

В случае, когда СТС отсутствует, функции  $f^K(p)$  пропорциональны соответствующим постоянным электронной релаксации:  $f^K(p) = \gamma^x/\Gamma_0$ , где  $K=x$ . Величины  $\gamma^x$  пропорциональны давлению  $p$ . Из [3] видно, что в данном случае сечения деполяризации не зависят от давления. В отсутствие СТС они не зависят также и от условий возбуждения (это следует из «одноэкспоненциального» характера распада поляризаций).

При наличии СТС СД носит сложный, «многоэкспоненциальный» характер. Вследствие этого функции  $f^K(p)$  уже не будут линейными, а сечения деполяризации  $\sigma^K$ , определяемые формулой (3), зависят от давления. Вторым важным следствием многоэкспоненциальности СД при наличии СТС является зависимость сечений деполяризации от условий возбуждения.

Введем вместо давления  $p$  безразмерный параметр  $u = nvs/\Gamma_0$ , где  $s$  имеет размерность площади и определяется силами взаимодействия. В рассматриваемом ниже случае диполь-дипольного дисперсионного взаимодействия возбужденного атома в состоянии с  $j_1=3/2$  и невозбужденного атома инертного газа величина  $s$  выражается через анизотропию констант  $C_m$  дисперсионного взаимодействия [3]:

$$s \equiv 0.6 (24\pi^4)^{1/2} \Gamma(9/5) \left( \frac{C_{m=1/2} - C_{m=3/2}}{\hbar\nu} \right)^{2/5}, \quad (4)$$

$m$  — проекция момента  $j_1$  возбужденного атома на линию, соединяющую его ядро с ядром атома инертного газа.

Влияние условий возбуждения на процесс СД при наличии СТС мы рассмотрим на примере СД флуоресценции переходов  $6^2D_{3/2} - 6^2P_{1/2}$  и  $6^2D_{3/2} - 6^2P_{3/2}$  изотопов  $Tl^{203, 205}$ , возбуждаемой линией  $6^2D_{3/2} - 6^2P_{1/2}$  таллиевой лампы. Именно этот случай изучался ранее экспериментально в работах [4, 5].

Так как СТС возбужденного состояния  $6^2D_{3/2}$  ( $A=42$  Мгц. [6]) очень мала по сравнению с доплеровым уширением, то достаточно учесть возможность неравномерного распределения интенсивности  $I$  возбуждения только по уровням основного состояния  $6^2P_{1/2}$  ( $F_0=0$  и 1). Эта неравномерность характеризуется параметром

$$y \equiv I(F_0=1)/I(F_0=0). \quad (5)$$

Расчеты СД линий  $6^2D_{3/2}^j - 6^2P_j$  (где  $j=1/2$  или  $3/2$ ) были нами выполнены при различных значениях параметра  $y$  путем точного решения системы кинетических уравнений для матрицы плотности [4] на ЭВМ. При этом использовались теоретические значения постоянных электронной релаксации  $\gamma^x$ , вычисленные в работе [3].

В табл. 1 и 2 приведены рассчитанные сечения СД в зависимости от условий возбуждения (параметра  $y$ ) соответственно для круговой и линейной поляризаций, найденные при малых ( $u=0.25$ ), умеренных ( $u=2.5$ ) и сравнительно высоких ( $u=5$ ) давлениях инертного газа. В заголовках столбцов указаны квантовые числа  $j$  и  $F$ , определяющие конечное состояние, в которое атом переходит при флуоресценции. «Широкая линия»

Таблица 1

Сечения разрушения круговой поляризации линий  $6^2D_{3/2} - 6^2P_j$  ( $j = 1/2, 3/2$ )  
 $T_{1203, 205}$  при столкновениях с атомами инертного газа

$j$	$F$	$u$	$y$						
			0	0.3	0.5	1	2	3	$\infty$
$1/2$	0	{ 0.25	1.04	1.05	1.06	1.07	1.10	1.13	1.43
		{ 2.5	1.01	1.03	1.04	1.06	1.10	1.15	1.76
		{ 5	0.97	0.98	1.00	1.03	1.10	1.17	2.82
$1/2$	1	{ 0.25	0.78	0.76	0.75	0.74	0.73	0.72	0.69
		{ 2.5	0.78	0.76	0.75	0.74	0.73	0.71	0.69
		{ 5	0.78	0.77	0.75	0.74	0.73	0.72	0.69
$3/2$	1	{ 0.25	1.03	1.02	1.02	1.01	1.01	1.01	0.99
		{ 2.5	1.09	1.08	1.07	1.06	1.03	1.01	0.93
		{ 5	1.16	1.14	1.13	1.09	1.01	0.99	0.81
$3/2$	2	{ 0.25	0.53	0.56	0.58	0.59	0.60	0.61	0.63
		{ 2.5	0.49	0.53	0.55	0.58	0.61	0.62	0.66
		{ 5	0.44	0.49	0.53	0.57	0.63	0.64	0.73
$1/2, 3/2$	«Широкая линия»	{ 0.25	0.88	0.86	0.85	0.84	0.81	0.79	0.74
		{ 2.5	0.86	0.84	0.83	0.81	0.79	0.78	0.74
		{ 5	0.85	0.83	0.82	0.81	0.79	0.78	0.74

Примечание. Сечения разрушения круговой поляризации даны в единицах  
 $s \equiv 0.6 (24\pi^4)^{1/2} \Gamma (e/s) \left( \frac{C_m = 1/2 - C_m = 3/2}{\hbar\nu} \right)^{2/3}$ .

Таблица 2

Сечения разрушения линейной поляризации линий  $6^2D_{3/2} - 6^2P_j$  ( $j = 1/2, 3/2$ )  
 $T_{1203, 205}$  при столкновениях с атомами инертного газа \*

$j$	$F$	$u$	$y$						
			0	0.3	0.5	1	2	3	$\infty$
$1/2$	0	{ 0.25	1.03	1.05	1.06	1.11	1.27	1.83	0.81
		{ 2.5	1.03	1.05	1.07	1.12	1.36	2.83	0.81
		{ 5	1.03	1.05	1.07	1.13	1.40	3.80	0.80
$1/2$	1	{ 0.25	0.81	0.93	0.89	0.87	0.87	0.87	0.86
		{ 2.5	0.80	0.55	0.63	0.66	0.67	0.67	0.68
		{ 5	0.80	0.48	0.56	0.61	0.62	0.62	0.63
$3/2$	1	{ 0.25	1.02	0.98	0.95	0.83	0.11	4.85	1.36
		{ 2.5	1.03	0.88	0.78	0.52	-0.05	-0.69	+11
		{ 5	1.04	0.85	0.71	0.46	-0.01	-0.34	-3.6
$3/2$	2	{ 0.25	-0.40	1.10	1.05	1.00	0.98	0.98	0.96
		{ 2.5	0.18	1.02	0.97	0.93	0.91	0.90	0.89
		{ 5	0.25	0.89	0.94	0.90	0.88	0.88	0.87
$1/2, 3/2$	«Широкая линия»	{ 0.25	1.11	1.03	1.00	0.96	0.93	0.91	0.86
		{ 2.5	1.12	0.93	0.88	0.80	0.74	0.72	0.66
		{ 5	1.13	0.90	0.83	0.74	0.69	0.66	0.61

\* В тех же единицах, что и в табл. 1.

означает случай, когда СТС конечного состояния  $6^2P_j$  не разрешается. Остальные случаи соответствуют СД «узких линий» флуоресценции, возникающих при переходах из состояния  $6^2D_{3/2}$  на один определенный уровень  $F$  СТС конечного состояния  $6^2P_j$ , где  $j=1/2$  или  $3/2$ .

В случае «узких линий» сечения СД сильно зависят от условий возбуждения (параметра  $y$ ). Из табл. 1 видно, что при фиксированном давлении (параметре  $u$ ) изменение  $y$  от нуля до бесконечности (что соответствует переходу от возбуждения флуоресценции чистой компонентой  $F_0=0$  СТС основного состояния к возбуждению чистой компонентой  $F_0=1$ ) сечения разрушения круговой поляризации могут изменяться от нескольких процентов до 2 ÷ 3 раз. Зависимость от условий возбуждения еще более резко выражена в случае разрушения линейной поляризации (табл. 2). При этом особенно выделяются «узкие линии»  $6^2D_{3/2} - 6^2P_{3/2}$ ,  $F=1$  и  $6^2D_{3/2} - 6^2P_{3/2}$ ,  $F=2$ , СД которых носит «аномальный» (по сравнению со случаем отсутствия СТС) характер. Для этих двух линий на рис. 1 и 2 приведены графики функций  $f^2(u)$  при различных значениях пара-

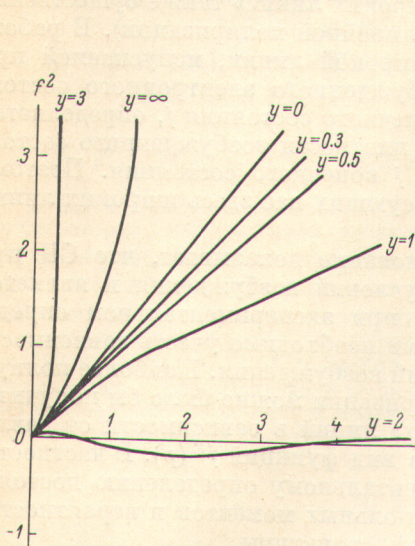


Рис. 1. Распад плоской поляризации линии  $6^2D_{3/2} - 6^2P_{3/2}$ ,  $F=1$  под действием столкновений при различных условиях возбуждения.

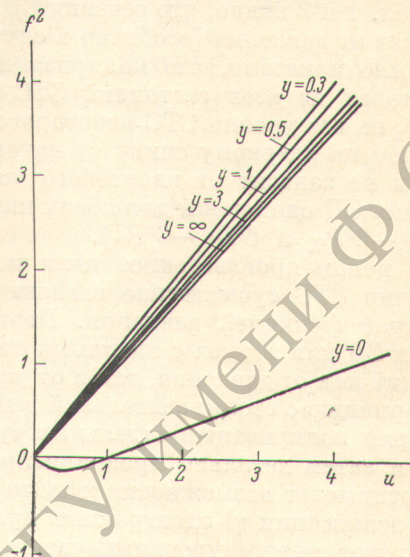


Рис. 2. Распад плоской поляризации линии  $6^2D_{3/2} - 6^2P_{3/2}$ ,  $F=2$  под действием столкновений при различных условиях возбуждения.

метра  $y$  (т. е. при различных условиях возбуждения). Из семейства кривых, характеризующих СД линейной поляризации первой из указанных линий, видно, что при  $y < 2$  поляризация плавно убывает с ростом давления (однако сечение деполяризации быстро падает с ростом параметра  $y$ ). При  $y=2$  деполяризация носит необычный характер: в области малых давлений (при  $u \leq 0.25$ ) происходит небольшая деполяризация, а затем поляризация возрастает, достигая при  $u=0.5$  первоначального значения  $\mathcal{P}^2(0)$ ; в окрестности точки  $u=2.00$  поляризация максимальна и на 13% превосходит первоначальную. С дальнейшим ростом давления поляризация вновь монотонно убывает. При соотношениях компонент СТС возбуждающего света, лежащих в области от  $y=3$  до  $y=\infty$ , графики на рис. 1 имеют разрывы с вертикальными асимптотами. Точки разрыва соответствуют обращению в нуль степени поляризации и перемене ее знака. Такие аномалии СД возможны только при наличии СТС: они обусловлены конкуренцией вкладов различного знака, вносимых в степень поляризации разными типами электронной когерентности.<sup>2</sup>

Назовем (условно) «положительными» вклады в поляризацию, совпадающие по знаку с начальной поляризацией  $\mathcal{P}^K(0)$ . Если теперь с ростом

<sup>2</sup> Наглядной физической причиной аномалий столкновительной деполяризации при наличии сверхтонкой структуры является индуцированный столкновениями перенос когерентности между различными уровнями сверхтонкой структуры возбужденного состояния.

давления «отрицательные» вклады в поляризацию убывают намного быстрее «положительных», то возможно на первый взгляд парадоксальное увеличение поляризации с ростом давления. Если же «положительные» вклады убывают намного быстрее «отрицательных», то возможно обращение поляризации в нуль с последующим изменением ее знака.

«Аномальное» увеличение степени поляризации по сравнению с первоначальной имеет место также для линии  $6^2D_{3/2}-6^2P_{3/2}$ ,  $F=2$  (рис. 2) при  $y=0$  (в области давлений  $u \leq 1$ ). Максимальная поляризация достигается при этом в точке  $u=0.5$  и составляет 112% от первоначальной поляризации.

В случае «широких линий», каждая из которых является суперпозицией двух «узких линий», указанные аномалии сглаживаются. Однако из табл. 1 и 2 видно, что сечения СД «широких линий» также существенно зависят от давления (особенно в случае линейной поляризации). В работе [4] было показано, что поляризация широкой линии, испускаемой при переходах из всех состояний СТС возбужденного электронного состояния  $j_1$  на все уровни СТС некоторого конечного состояния  $j$ , определяется шпуром по ядерному спину от матрицы плотности возбужденного состояния и не зависит от квантового числа  $j$  конечного состояния. Поэтому сечения СД одинаковы для обеих интересующих нас здесь широких линий ( $6^2D_{3/2}-6^2P_{1/2}$  и  $6^2D_{3/2}-6^2P_{3/2}$ ).

В целом произведенное нами исследование показывает, что СД при наличии СТС существенно зависит от условий возбуждения и является сложной функцией давления. Поэтому при экспериментальном определении СД для атомов с ядерными спинами необходимо учесть зависимость сечений как от давления, так и от условий возбуждения. Наиболее полную информацию о столкновительной деполяризации можно было бы получить, измеряя поляризацию отдельных «узких» линий в зависимости от давления и затем детально проанализировав вид функций  $f^K(p)$ . В частности, это открывает возможности к экспериментальному определению постоянных релаксации  $\gamma^*$  электронных мультипольных моментов и вероятностей переходов между уровнями сверхтонкой структуры.

#### Литература

- [1] В. Н. Ребане, Т. К. Ребане. Опт. и спектр., 33, 405, 1972.
- [2] М. Борн. Оптика. ОНТИ, 1937.
- [3] А. И. Окуневич, В. И. Перель. ЖЭТФ, 58, 666, 1970.
- [4] В. Н. Ребане, Т. К. Ребане, В. А. Черенковский. Опт. и спектр., 33, 616, 1972.
- [5] С. Теплова, М. Чайка, В. Черенковский. Опт. и спектр., 25, 346, 1968.
- [6] W. Gough, G. W. Series. Proc. Phys. Soc. (London), 85, 469, 1965.

Поступило в Редакцию 15 марта 1973 г.