

ЗАВИСИМОСТЬ УШИРЕНИЯ И СДВИГА СПЕКТРАЛЬНОЙ ЛИНИИ ОТ ПОЛЯРИЗАЦИИ ПРИ АНИЗОТРОПНЫХ СТОЛКНОВЕНИЯХ

В. Н. Ребане

На примере электронного перехода $j=1 \rightarrow j_0=0$ теоретически исследована зависимость уширения и сдвига линии от поляризации в случае анизотропных столкновений. На основе численного решения уравнений метода прицельного параметра найдено, что в случае дисперсионного взаимодействия нейтральных атомов уширение различным образом поляризованных компонент линии может различаться на 20—30%, а отношения уширения к сдвигу — в несколько раз.

Ударное уширение и сдвиг спектральных линий рассматривается обычно в «изотропном» случае, когда все направления столкновений атомов равновероятны. В частности, для линий $j=1 \rightarrow j_0=0$ и $j=2 \rightarrow j_0=1$ ударное уширение и сдвиг были детально (с учетом вырождения атомных уровней) рассчитаны путем численного интегрирования уравнений метода прицельного параметра соответственно в работах [1, 2].

В связи с развитием методики атомных и ионных пучков, а также спектроскопии высокой разрешающей силы, представляет значительный интерес задача об ударном уширении и сдвиге в «анизотропном» случае, когда соударения атомов характеризуются одним выделенным направлением относительных скоростей. В данной работе эта задача решается для электронного перехода $j=1 \rightarrow j_0=0$ в атомах А, сталкивающихся с атомами постороннего инертного газа В. Как и в работе [1], взаимодействие А...В предполагается дисперсионным (пропорциональным R^{-6}), и вычисления основываются на точном численном интегрировании уравнений метода прицельного параметра.

Форма линии испускания, поляризованной вдоль орта e_z , связана с функцией корреляции Φ_{e_z} электрического дипольного момента соотношением [3]

$$I_{e_z}(\omega) = \frac{1}{\pi} \operatorname{Re} \int_0^{\infty} e^{i\omega t} \Phi_{e_z}(t) dt. \quad (1)$$

Пусть ось z параллельна направлению соударений А...В. Для интересующего нас перехода $j=1 \rightarrow j_0=0$ удобно ввести три функции корреляции $\Phi_m(t)$, где $m=-1, 0, +1$. Они описывают круговые компоненты электрического дипольного момента и соответствуют левой круговой поляризации при наблюдении по оси z ; линейной поляризации света с электрическим вектором, параллельным оси z , и правой круговой поляризации при наблюдении вдоль оси z . Каждая из функций корреляции $\Phi_m(t)$ зависит от времени точно так же, как соответствующий недиагональный по состояниям $j=1, j_0=0$ элемент матрицы плотности $\sigma_{m_0}^{1,0}$. Нетрудно написать вклад, вносимый столкновениями в изменение элементов матрицы плотности

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} \sigma_{m_0}^{1,0} \right)_{\text{столкн.}} = 2\pi n \nu \int_0^{\infty} \rho d\rho \left[\sum_{m_1, m_2} \frac{D_{m_1}^1(g) D_{m_3 m_2}^{1*}(g)}{\tilde{S}_{m_1 m_2}^1 \tilde{S}_{0_0}^1 \sigma_{m_3 0}^{1,0}} - \sigma_{m_0}^{1,0} \right]. \quad (2)$$

Матрицы рассеяния \tilde{S}^1 и \tilde{S}^0 относятся к возбужденному ($j=1$) и основному ($j_0=0$) состояниям; они записаны в системе координат, повернутой вокруг оси z так, что траектория атома В лежит в плоскости xz . Через n обозначена плотность атомов В, v — относительная скорость соударящихся атомов А и В; интегрирование производится по всем значениям прицельного параметра ρ ; черта обозначает усреднение по поворотам g осей x, y вокруг оси z . Именно в этом усреднении проявляется отличие анизотропных столкновений от изотропного случая, рассмотренного в [1], когда усреднение в формуле (2) проводилось по всем трехмерным вращениям.

Выполнив усреднение по поворотам и учтя связь матрицы плотности $\sigma_{m_0}^{10}$ с функцией корреляции Φ_m , получим следующие уравнения для изменения функций корреляции круговых компонент электрического дипольного момента под действием анизотропных столкновений:

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} \Phi_m\right)_{\text{столкн.}} = -\Theta_m \Phi_m. \quad (3)$$

Постоянные затухания функций корреляций Φ_m , которые определяют уширение и сдвиг спектральной линии, при этом равны

$$\Theta_m = 2\pi n v \int_0^\infty \rho d\rho (1 - \tilde{S}_{mm}^1 S_{00}^{0*}). \quad (4)$$

Случай $m=0$ описывает свет, поляризованный параллельно оси z . Поэтому удобно ввести обозначение: $\Theta_0 \equiv \Theta_{\parallel}$. Случаи $m=\pm 1$ описывают левую и правую круговую поляризацию при наблюдении вдоль оси z . Так как матрица рассеяния удовлетворяет условию [4] $\tilde{S}_{mm}^j = \tilde{S}_{-m-m}^j$, то имеет место $\Theta_{+1} = \Theta_{-1} \equiv \Theta_{\perp}$. Любой тип поляризации света с электрическим вектором, перпендикулярным к оси z , можно представить в виде линейной комбинации поляризаций типа $m=+1$ и -1 . Отсюда следует, что для всякой поляризации света (линейной, круговой или эллиптической), наблюдаемой вдоль оси z , функция корреляции затухает с одной и той же постоянной Θ_{\perp} . Поэтому форма линии, наблюдаемой вдоль пучка соударяющихся атомов, является лорентцовой, а ее уширение и сдвиг не зависят от поляризации и определяются величиной Θ_{\perp} . Иначе обстоит дело при наблюдении света, испускаемого перпендикулярно к оси z . Если в этом случае анализатор выделяет линию, поляризованную линейно соответственно вдоль оси z или перпендикулярно к ней, то уширение и сдвиг линии определяются в первом случае величиной Θ_{\parallel} , а во втором — величиной Θ_{\perp} . В обоих случаях линия имеет лорентцову форму. Так как $\Theta_{\parallel} \neq \Theta_{\perp}$, то уширение и сдвиг зависят от поляризации. В этом заключается существенное отличие анизотропного столкновительного уширения и сдвига от рассмотренного ранее [1] изотропного случая, когда ни уширение, ни сдвиг не зависят от поляризации. Заметим еще, что в анизотропном случае форма линии будет лорентцовой только при регистрации света, электрический вектор которого либо параллелен, либо перпендикулярен оси z . В общем же случае (при произвольном направлении наблюдения и регистрации произвольного типа поляризации) контур линии является суперпозицией двух лорентцовых контуров, уширения и сдвиги которых характеризуются соответственно постоянными затухания Θ_{\parallel} и Θ_{\perp} .

Обратимся теперь к расчету величин Θ_{\parallel} и Θ_{\perp} в случае дисперсионного взаимодействия нейтральных атомов А и В. В зависимости от состояния атома А энергия этого взаимодействия равна C_{\parallel}/R^6 ($j=1, |m|=1$), C_{\perp}/R^6 ($j=1, m=0$) или C_0/R^6 ($j_0=0, m=0$). Поскольку входящая в формулу (4) матрица рассеяния для невырожденного основного состояния характеризуется просто числом $\tilde{S}_{00}^0 = e^{-\frac{i}{\hbar} \Delta_0}$, где Δ_0 — набег фазы в состоянии $j_0=0$ за время столкновения, то задача расчета величин Θ_{\parallel} и Θ_{\perp}

сводится к расчету диагональных элементов \tilde{S}^1 -матрицы при различных прицельных расстояниях ρ . В работах [4-7] было показано, что изменение внутреннего состояния возбужденного атома А ($j=1$) во время столкновения описывается системой дифференциальных уравнений

$$\left. \begin{aligned} i \frac{da}{d\varphi} &= B \sin^4 \varphi (a/2) + b, \\ i \frac{db}{d\varphi} &= a - B \sin^4 \varphi (b/2). \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

Через B обозначен безразмерный параметр Мессе

$$B \equiv (C_{\Sigma} - C_{\Pi}) / \hbar \rho^5 v. \quad (6)$$

Пусть функции $a(\varphi)$ и $b(\varphi)$ образуют решение системы (5) при начальных условиях $a(0)=1$, $b(0)=0$. Тогда элементы \tilde{S}^1 -матрицы полностью определяются значениями $a(\pi)$ и $b(\pi)$ и набегам фаз за время столкновения в Σ - и Π -состояниях «квазимолекулы» $A^* \dots B$. Учитывая формулы для элементов \tilde{S}^1 -матрицы [5] и принимая во внимание (4), получаем следующие явные выражения для анизотропного столкновительного уширения и сдвига линии $j=1 \rightarrow j_0=0$:

$$2 \operatorname{Re} \theta_{\perp} = 4\pi n v \int_0^{\infty} \rho d\rho \left[1 - \frac{1}{2} (-\operatorname{Re} a(\pi) \cos \Delta_{01} - \operatorname{Im} a(\pi) \sin \Delta_{01} + \cos \Delta_{02}) \right], \quad (7)$$

$$2 \operatorname{Re} \theta_{\parallel} = 4\pi n v \int_0^{\infty} \rho d\rho [1 + \operatorname{Re} a(\pi) \cos \Delta_{01} - \operatorname{Im} a(\pi) \sin \Delta_{01}], \quad (8)$$

$$\operatorname{Im} \theta_{\perp} = -\pi n v \int_0^{\infty} \rho d\rho [-\operatorname{Re} a(\pi) \sin \Delta_{01} + \operatorname{Im} a(\pi) \cos \Delta_{01} + \sin \Delta_{02}], \quad (9)$$

$$\operatorname{Im} \theta_{\parallel} = -2\pi n v \int_0^{\infty} \rho d\rho [-\operatorname{Re} a(\pi) \sin \Delta_{01} - \operatorname{Im} a(\pi) \cos \Delta_{01}]. \quad (10)$$

Через Δ_{01} и Δ_{02} соответственно обозначены разности $(\Delta_0 - \Delta_1)$ и $(\Delta_0 - \Delta_2)$, где $\Delta_0 = 3\pi C_0 / 8\hbar v \rho^5$ есть набег фазы в основном электронном состоянии ($j_0=0$), $\Delta_1 = 3\pi(C_{\Sigma} + C_{\Pi}) / 16\hbar v \rho^5$ — среднее из набегов фаз в Σ - и Π -состояниях (при $j=1$), а $\Delta_2 = 3\pi C_{\Pi} / 8\hbar v \rho^5$ — набег фазы в Π -состоянии (при $j=1$).

Вводя в рассмотрение безразмерный параметр

$$q \equiv \frac{C_{\Pi} - C_0}{C_{\Sigma} - C_{\Pi}} \quad (11)$$

и преобразовав интегралы (7)–(10) при помощи замены переменной интегрирования ρ на B (с учетом (6)), получаем следующие формулы для практического расчета уширения и сдвига в анизотропном случае:

$$2 \operatorname{Re} \theta_{\perp} = 2k \int_0^{\infty} \frac{dB}{B^{3/2}} \left[1 - \frac{1}{2} \left(-\operatorname{Re} a(\pi) \cos \frac{3\pi B (2q+1)}{16} + \operatorname{Im} a(\pi) \sin \frac{3\pi B}{16} (2q+1) + \cos \frac{3\pi B}{8} q \right) \right], \quad (12)$$

$$2 \operatorname{Re} \theta_{\parallel} = 2k \int_0^{\infty} \frac{dB}{B^{3/2}} \left[1 + \operatorname{Re} a(\pi) \cos \frac{3\pi B}{16} (2q+1) + \operatorname{Im} a(\pi) \sin \frac{3\pi B}{16} (2q+1) \right], \quad (13)$$

$$\operatorname{Im} \theta_{\perp} = \frac{k}{2} \operatorname{sign}(C_{\Sigma} - C_{\Pi}) \int_0^{\infty} \frac{dB}{B^{3/2}} \left[-\operatorname{Re} a(\pi) \sin \frac{3\pi B}{16} (2q+1) - \right.$$

$$- \operatorname{Im} a(\pi) \cos \frac{3\pi B}{16} (2q+1) + \sin \frac{3\pi B}{8} q], \quad (14)$$

$$\operatorname{Im} \theta_{\parallel} = k \operatorname{sign}(C_{\Sigma} - C_{\Pi}) \int_0^{\infty} \frac{dB}{B^{3/2}} \left[-\operatorname{Re} a(\pi) \sin \frac{3\pi B}{8} (2q+1) + \right. \\ \left. + \operatorname{Im} a(\pi) \cos \frac{3\pi}{16} (2q+1) \right]. \quad (15)$$

При выводе этих формул учитывалось, что в зависимости от знака разности $C_{\Sigma} - C_{\Pi}$ параметр B может меняться либо от 0 до $+\infty$, либо от 0 до $-\infty$. В первом случае формулы (12)–(15) получаются просто заменой переменной интегрирования p на B . Во втором случае получаются интегралы, содержащие решения уравнений (5) при отрицательных B . Однако

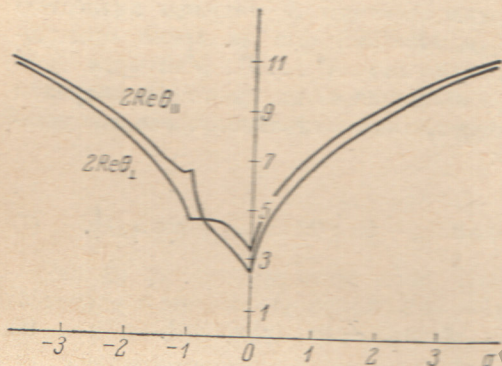


Рис. 1. Зависимость уширения продольно поляризованной ($2\operatorname{Re}\theta_{\parallel}$) и поперечно поляризованной ($2\operatorname{Re}\theta_{\perp}$) линии от параметра q .

Величины $2\operatorname{Re}\theta_{\parallel}$ и $2\operatorname{Re}\theta_{\perp}$ приведены в единицах $k = (2/5) \pi n v^{3/2} |C_{\Sigma} - C_{\Pi}|^{1/2}$.

с учетом свойств решений этих уравнений относительно изменения знака времени [6, 7] оба случая объединяются в формулах (12)–(15). Ради краткости введено обозначение

$$k = \frac{2\pi n v^{3/2}}{5} \left| \frac{C_{\Sigma} - C_{\Pi}}{h} \right|^{1/2}. \quad (16)$$

Решение уравнений (5) производилось на ЭВМ для интервала значений параметра Мессе B от 0.01 до 100 с равномерным шагом в 500 точках. Из полученных решений формировались и численно вычислялись интегралы (11)–(15). Результаты расчетов представлены на рис. 1 и 2. На рис. 1 изображена зависимость уширения продольно-поляризованной ($2\operatorname{Re}\theta_{\parallel}$) и поперечно-поляризованной ($2\operatorname{Re}\theta_{\perp}$) линии от параметра eq (11).¹ В наиболее характерной области ($-1 \leq q \leq 0$) уширения различным образом поляризованных компонент линии различаются до 20–30%. При $q = -0.8$ графики $2\operatorname{Re}\theta_{\perp}$ и $2\operatorname{Re}\theta_{\parallel}$ пересекаются; при $q < -0.8$ сильнее уширяется продольно-поляризованная линия, а при $q > -0.8$ — поперечно-поляризованная линия. Усредненное по поляризациям уширение $2\operatorname{Re}\theta \equiv (1/3)(4\operatorname{Re}\theta_{\perp} + 2\operatorname{Re}\theta_{\parallel})$ полностью совпадает с уширением, вычисленным ранее [1] для изотропного случая.

На рис. 2 приведены отношения уширения к сдвигу, т. е. величины $2\operatorname{Re}\theta_{\parallel}/\operatorname{Im}\theta_{\parallel}$ и $2\operatorname{Re}\theta_{\perp}/\operatorname{Im}\theta_{\perp}$, для продольно- и поперечно-поляризованной линии. Как и в работе [1], где рассматривался изотропный случай, приводимые на рис. 2 графики соответствуют положительному знаку разности $C_{\Sigma} - C_{\Pi}$. Так как уширение не зависит от знака этой разности, а сдвиг меняет знак при изменении ее знака (см. формулы (12)–(15)), то графики, пригодные для случая $C_{\Sigma} - C_{\Pi} < 0$, получаются из приводимых на рис. 2 просто изменением знака ординаты. Ввиду того что

¹ Происхождение пиков на графиках рис. 1 связано с особенностями подынтегральных выражений в формулах (12) и (13). Аналогичные пики имеются и в изотропном случае [1].

в анизотропном случае сдвиги $\text{Im} \theta_{\parallel}$ и $\text{Im} \theta_{\perp}$ обращаются в нуль в разных точках (соответственно при $q = -0.16$ и при $q = -0.36$); отношения уширения к сдвигу в области $-1 \leq q \leq 0$ для поперечно- и продольно-поляризованной линии могут различаться в несколько раз. Вне этой области графики для обеих поляризаций практически совпадают и быстро стремятся к пределу ± 2.75 , согласующемуся с классической ударной теорией уширения и сдвига.

Графики на рис. 1 и 2 позволяют непосредственно определить характеристики уширения и сдвига линии в зависимости от ее поляризации (в случае анизотропной релаксации). Проиллюстрируем это на примере четырех электронных переходов, рассмотренных ранее [1] в изотропном случае: а) переход $5^1P_1 - 5^1S_0$ в Cd, б) переход $5^3P_1 - 5^1S_0$ в Cd, в) переход $4^1P_1 - 4^1S_0$ в Ca, г) переход $4^3P_1 - 4^1S_0$ в Ca. Согласно оценкам из работы [1], эти переходы характеризуются следующими значениями параметра q при столкновениях соответственно с Ar, Kr и Xe: а) $q = -0.12, -0.13, -0.14$, $(C_{\Sigma} - C_{\pi}) < 0$; б) $q = -0.60, -0.56, -0.57$, $(C_{\Sigma} - C_{\pi}) > 0$; в) $q = -0.26, -0.25, -0.23$, $(C_{\Sigma} - C_{\pi}) < 0$; г) $q = -0.50, -0.51, -0.54$, $(C_{\Sigma} - C_{\pi}) > 0$. Из рис. 1 видно, что разность уширений различным образом поляризованных линий составляет в этих случаях от 10 до 25%. При этом теория предсказывает, что у всех четырех линий сильнее уширяется компонента, поляризованная поперек выделенного направления столкновений. Из рис. 2 видно, что отношения уширения к сдвигу существенно зависят от поляризации линии; эти отношения для различных поляризаций не только в два-три раза различаются по абсолютной величине, но могут быть даже противоположны по знаку (если q попадет в интервал $-0.36 < q < -0.16$).

Ранее нами были предсказаны [4] интересные особенности деполяризации спектральных линий под действием анизотропных столкновений, в частности, было предсказано превращение линейной поляризации в круговую. Эти выводы теории нашли экспериментальное подтверждение в работе [8].

Произведенное в настоящей работе рассмотрение показывает, что анизотропная столкновительная деполяризация приводит к зависимости уширения и сдвига от поляризации линии, которая достаточно сильна, чтобы ее можно было обнаружить современными экспериментальными методами. Комплексное изучение уширения, сдвига и деполяризации спектральной линии в условиях анизотропных столкновений представляет значительный интерес и дает существенно более богатую информацию о механизме влияния столкновений на состояние излучающего атома по сравнению с «традиционным» в экспериментальной практике изотропным случаем.

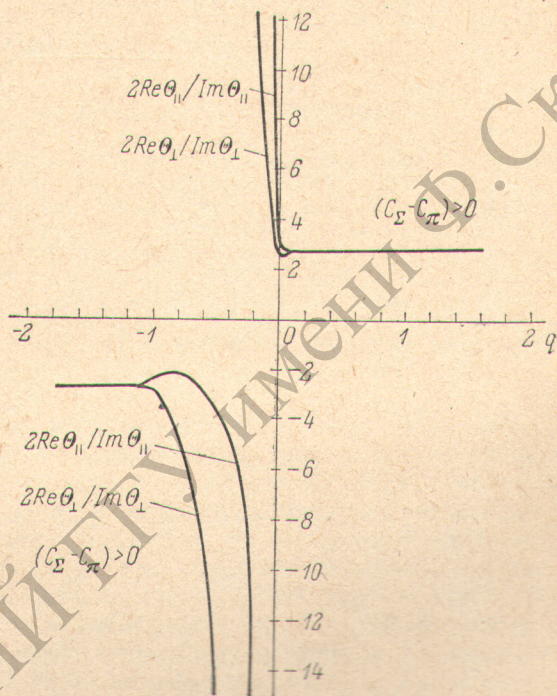


Рис. 2. Отношение уширения к сдвигу для продольно поляризованной ($2\text{Re} \theta_{\parallel} / \text{Im} \theta_{\parallel}$) и поперечно поляризованной ($2\text{Re} \theta_{\perp} / \text{Im} \theta_{\perp}$) линии.

Литература

- [1] В. Н. Ребане. *Опт. и спектр.*, 26, 673, 1969.
- [2] В. К. Мацкевич. *Опт. и спектр.*, 37, 411, 1974.
- [3] И. И. Собельман. *Введение в теорию атомных спектров*, гл. 10. М.—Л., 1963.
- [4] В. Н. Ребане. *Опт. и спектр.*, 24, 296, 1968.
- [5] В. Н. Ребане. *Опт. и спектр.*, 24, 309, 1968.
- [6] В. Н. Ребане. Автореф. канд. дисс., ЛГУ, Л., 1969.
- [7] А. Г. Петрашень, В. Н. Ребане, Т. К. Ребане. *Опт. и спектр.*, 35, 408, 1973.
- [8] E. Chamoun. *Etude de l'anisotropie de la relaxation de niveaux atomiques excites*. These, Univ. Grenoble, 1973.

Поступило в Редакцию 1 июня 1976 г.

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ имени Ф. СКОРИНЫ