

ОПТИЧЕСКОЕ ВОЗБУЖДЕНИЕ В РЕЖИМЕ ПЕРЕНОСА ИЗЛУЧЕНИЯ С УЧЕТОМ ТУШЕНИЯ ВОЗБУЖДЕННЫХ СОСТОЯНИЙ

Н. Н. Безуглов, Б. В. Добролеж, А. Н. Ключарев,
Л. П. Разумовская и Г. Пихлер

Рассмотрена возможность применения приближения эффективных времен жизни по Биберману при решении кинетического уравнения переноса излучения в случае оптического возбуждения среды конечных размеров с учетом тушения для дисперсионного и доплеровского контуров линий. Обсуждается возможность использования полученных результатов для количественных исследований слабых эффектов тушения резонансного излучения.

Строгое квантовомеханическое рассмотрение вопросов теории пленения излучения [1-3] показало применимость приближения полного перераспределения излучения по частоте (ППЧ) при решении задач переноса излучения. В этом приближении проблема количественного рассмотрения процессов пленения может быть сведена к исследованию пространственного и временного распределения возбужденных атомов $n^*(x, t)$, являющегося решением кинетического уравнения Бибермана—Холстейна [4, 5]

$$\frac{dn^*(x, t)}{dt} = -(A_0 + W)n^*(x, t) + \alpha^*(x, t) + A_0 \int G(x, \tilde{x}) n^*(\tilde{x}, t) d\tilde{x}, \quad (1)$$

где $\alpha^*(x, t)$ — функция первичных источников, $G(x, \tilde{x})$ — вероятность поглощения в точке x фотона, испущенного в точке \tilde{x} (рассматривается цилиндрически симметричная задача), A_0 и W — соответственно вероятности радиационных и безызлучательных (тушащих) процессов разрушения возбужденных состояний. В [6] приводились результаты расчета и экспериментального исследования параметров оптически плотной среды конечных размеров, возбуждаемой в режиме переноса излучения, расчет был выполнен для доплеровского вида контура линии. При отсутствии тушащих процессов в условиях [6] экспериментально было получено равномерное распределение возбужденных атомов в объеме с поглощающей средой, $n^*(x) = \text{const}$. Этот экспериментальный факт позволяет аналитическим образом определить характеристики первичных источников в условиях эксперимента подобных [6]. Заметим, что в случае безграничной среды равномерное распределение возбужденных атомов $n^*(x, t) = \text{const}$ является решением стационарного варианта уравнения (1) при $W=0$ и $\alpha^*(x, t)=0$. В этом случае интенсивность излучения в поглощающей среде не зависит от пространственной координаты, изотропно по направлению и постоянно во всем спектральном интервале частот, поглощаемых средой

$$I_e(w, x) = \frac{n^*(x)}{n_0 \lambda^2 g_1 / (g_0 8\pi)} = I_0. \quad (2)$$

Здесь W — единичный вектор направления распространения излучения, n_0 — концентрация поглощающих атомов, λ — длина волны оптического перехода, g_0 и g_1 — статистические веса нижнего и верхнего состояний.

Для любого выделенного внутри поглощающей среды объема при этом воздействие извне сведется к облучению его границы светом интенсивности I_0 . Концентрация возбужденных атомов по (2) оказывается равной

$$n^*(x) = I_0 \lambda^2 \frac{g_1}{g_0 8\pi}. \quad (3)$$

Экспериментальные условия, реализованные в [6], оказываются близки к рассмотренному выше случаю изотропного по направлению и равномерному в пределах поглощаемого средой интервала частот, в результате чего и формируется равномерное распределение возбужденных атомов. Подставив выражение $n^*(x)$ из (3) в уравнение (1), получим следующее выражение для $\alpha^*(x)$:

$$\alpha^*(x) = \frac{n_0 \lambda^2 g_1}{8\pi g_0} I_0 A_0 \left[1 - \int G(x, \tilde{x}) d\tilde{x} \right]. \quad (4)$$

Часть соотношения (4), заключенная в квадратные скобки, представляет собой вероятность $M_{\text{эфф.}}(x)$ вылета кванта света, испущенного в точке x , за пределы объема с поглощающей средой.

Рассмотрим возможность применения приближения эффективных времен жизни по [4] для решения уравнения (1) в интересующем нас случае оптического возбуждения в режиме переноса излучения. Согласно [4]

$$n_B^*(x) = \frac{\alpha^*(x)}{W + A_0 M_{\text{эфф.}}(x)} = \frac{n_0 \lambda^2 g_1}{8\pi g_0} \frac{M_{\text{эфф.}}(x)}{W/A_0 + M_{\text{эфф.}}(x)}. \quad (5)$$

В случае $W=0$ приближение $n_B^*(x)$ (5) является точным решением уравнения (1). При включении в рассмотрение тушащих процессов применимость приближения (5) требует специального рассмотрения и оказывается сильно зависящей от вида контура спектральных линий. Будем рассматривать зависимость концентрации возбужденных атомов в присевых частях цилиндрического объема радиуса R от величины скорости тушащих процессов W , выраженной в единицах $A_{\text{эфф.}}(0) = A_0 M_{\text{эфф.}}(r=0)$, $\tilde{W} = W/A_{\text{эфф.}}(0)$. В предельном случае больших значений $W \gg 1$ решение уравнения (1) может быть найдено в виде ряда Неймана по параметру $1/\tilde{W}$: $n_W^* = \left[\sum_0^{\infty} (\hat{G} - 1)^n \alpha^* \right] / \tilde{W}^{n+1}$, где \hat{G} — интегральный оператор пленения из (1). Ограничиваясь первыми двумя членами разложения, получим

$$\frac{n_{W=0}^*(0)}{n_W^*(0)} = \tilde{W} + \Delta_1, \quad \Delta_1 = \frac{[(\hat{G} - 1) M_{\text{эфф.}}]_{r=0}}{M_{\text{эфф.}}^2(0)}. \quad (6)$$

При больших значениях оптических плотностей $k_0 R$ может быть получено аналитическое выражение для Δ_1 . В данной статье из-за громоздкости соответствующих выкладок мы приведем лишь конечное выражение для Δ_1

$$\Delta_1 = \frac{\Gamma(1-\varepsilon) \Gamma(1-2\varepsilon)}{\Gamma(1-3\varepsilon)} {}_3F_2(-\varepsilon, -\varepsilon, 1-\varepsilon; 1-3\varepsilon, 1; -1). \quad (7)$$

Здесь Γ — гамма-функция, ${}_3F_2$ — обобщенный гипер-геометрический ряд а число ε характеризует форму крыльев спектральной линии, для доплеровского контура $\varepsilon_D = 0.5$, для лоренцевского контура $\varepsilon_L = 0.25$ [8]. В случае доплеровского и лоренцевского контуров $\Delta_1^D = -0.673 \ln(k_0 R)$, $\Delta_1^L = 0.7642$. Поскольку в приближении (5) $\Delta_1 = 1$, оно хорошо описывает случай лоренцевского контура и дает значительное расхождение с истинным видом распределения $n_W^*(r)$ для случая доплеровского контура. При малых значениях $\tilde{W} < 1$ отношение $n_{W=0}^*(0)/n_W^*(0)$ описывается линейной зависимостью от \tilde{W}

$$\frac{n_{W=0}^*(0)}{n_W^*(0)} = 1 + \Delta_2 \tilde{W}. \quad (8)$$

Приведем асимптотическое выражение для величины Δ_2 при больших $k_0 R$

$$\Delta_2 = \frac{\sin(\pi\epsilon)}{\pi\epsilon}, \quad \Delta_2^{(D)} = 0.637, \quad \Delta_2^{(L)} = 0.9002. \quad (9)$$

Поскольку в приближении (5) $\Delta_2=1$, оно снова мало отличается от точного выражения для $\Delta_2^{(L)}$.

Проведенный выше анализ позволяет в дальнейшем использовать приближение (5) в случае дисперсионного контура линии. Для доплеровского контура применение приближения (5) оказывается достаточно грубым. Этот вывод иллюстрируется зависимостями $1/n_w^*(0)$ от $W/A_{эфф.}^{(0)}$, приведенными

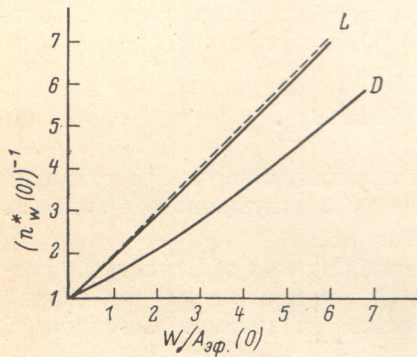


Рис. 1. Зависимость величины $1/n_w^*(0)$ от $W/A_{эфф.}^{(0)}$ (случай одиночной линии).

Сплошные кривые — результат численного решения уравнения (1) по методу [9]. D — случай доплеровского контура, L — случай лоренцовского контура. Штриховая кривая — приближение (5): $1+\tilde{W}$. Здесь и ниже все зависимости для концентрации возбужденных атомов приводятся при фиксированной мощности возбуждающего излучения.

на рис. 1. Предпочтительность лоренцовского типа контура при расчетах заселенности резонансно-возбужденных атомов по [5] в условиях газоразрядной плазмы была отмечена ранее в [9]. При расчетах $n_w^*(0)$ необ-

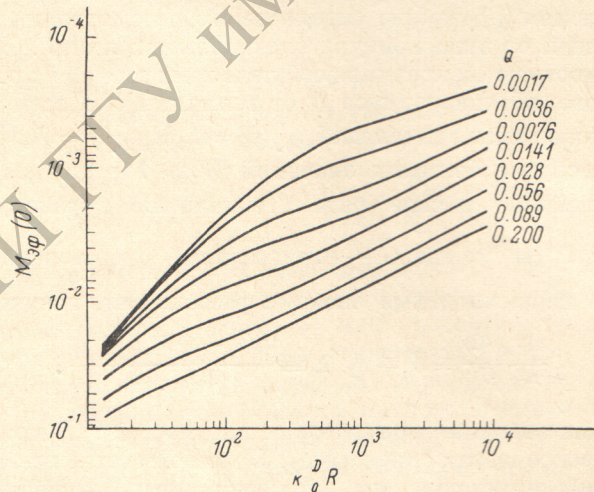


Рис. 2. Вероятность вылета фотона, испущенного в присоединенной части цилиндрического объема, $M_{эфф.}^{(0)}$ при разных значениях a и $k_0^{(D)} R$.

ходимо располагать данными о значениях $M_{эфф.}^{(0)}$. На рис. 2 приведены результаты расчета $M_{эфф.}^{(0)}$ по методу [10] для разных значений параметра Фойхта $a = \Delta\nu_L/\Delta\nu_D$. Мы используем соотношения: $\Delta\nu_D = \sqrt{2kT/m}\lambda$ и $\varphi_\nu \sim 1/[(\nu - \nu_0)^2 + \Delta\nu_L^2]$, где φ_ν — профиль дисперсионного контура по [8]. Можно выделить две области значений $k_0 R$ на рис. 2, для которых графики $M_{эфф.}^{(0)}$ ($k_0 R$) в масштабе рисунка прямолинейны. В интересующей нас области больших значений $k_0 R$ центральная (доплеровская) часть контура полностью поглощается и перенос излучения осуществляется за счет лоренцовской части контура. При этом

$$M_{эфф.}^{(0)} = 0.6565 \sqrt{\frac{a}{k_0^{(D)} R}}. \quad (10)$$

В этом диапазоне изменения $k_0 R$ (a) для расчета n^* применимо приближение (5). Можно указать также диапазон частот, ответственных за процесс переноса излучения в последнем случае. Определяющий вклад в вероятность $M_{эфф.}$ (0) вносят частоты из спектрального диапазона

$$|\nu - \nu_0| = (0.8 - 12) \sqrt{ak_0 R} \Delta\nu_D. \quad (11)$$

Кванты света с частотами, лежащими в диапазоне $|\nu - \nu_0| < 0.8 \sqrt{ak_0 R} \Delta\nu_D$, обладают большой вероятностью быть поглощенными в объеме; вероятность излучения в диапазоне $|\nu - \nu_0| > 12 \sqrt{ak_0 R} \Delta\nu_D$ мала. Вклад этих частей в интегральном выражении для $M_{эфф.}$ (0) не превышает 0.1 от его величины. В реализованных нами экспериментальных условиях оптически плотных паров цезия ($n_0 = 9 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$, $T = 453 \text{ К}$, $R = 0.9 \text{ см}$, $a_{1/2} = 0.55 \times 10^{-2} [^{12}]$, $a_{3/2} = 6.7 \cdot 10^{-2} [^{12}]$, $k_0^{(D)} R_{1/2} = 1680$, $k_0^{(D)} R_{3/2} = 3230$). Соотношение (11) соответствует эффективному интервалу частот 1400—35000 Мгц или спектральному интервалу на расстоянии 0.05—1 Å от центра линии. В этом случае оказывается возможным при расчетах поглощения пренебречь (CsI, $\lambda_{3/2} = 8521 \text{ Å}$, $\lambda_{1/2} = 8943 \text{ Å}$) сверхтонким расщеплением верхнего уровня. Сверхтонкое расщепление нижнего уровня (10000 Мгц) приводит к частичному перекрытию компонент СТС резонансных линий, имеющих общий излучающий уровень. Количественный учет этого фактора приводит к уменьшению величины $k_0^{(D)}$. В последнем случае выражение для $M_{эфф.}$ может быть записано в виде

$$M_{эфф.} = 0.6565 \sqrt{\frac{a}{Rk_0^{(D)}\beta}}. \quad (12)$$

В случае полностью неперекрывающихся компонент СТС $\beta = 0.5$. В наших условиях $\beta_{3/2} = 0.55$, $\beta_{1/2} = 0.52$.

Рассмотрим уравнение баланса заселенности резонансно возбужденных уровней (Cs ($6^2P_{3/2}$), Cs ($6^2P_{1/2}$)) с учетом процесса тушения и перемешивания собственным и примесным газами

$$\left. \begin{aligned} \alpha_1^* &= A_{эфф.}^{(1)} n_1^* + W_{12} n_1^* + W_{12} n_1^* - W_{21} n_2^* \} \\ \alpha_2^* &= A_{эфф.}^{(2)} n_2^* + W_{21} n_2^* + W_{21} n_2^* - W_{12} n_1^* \} \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

Здесь $W_{1,2}$ — вероятность безызлучательного тушения возбуждения примесным газом, индекс 1 соответствует состоянию $6^2P_{3/2}$, индекс 2 — состоянию $6^2P_{1/2}$. $W_i = k_i n_i$, k_i — константа скорости процесса, $W_{12, 21}$ — вероятность перемешивания компонент тонкой структуры терминами примесного и собственного газа: $W_{12} = k_{12}^{(Cs)} n_{Cs} + k_{12}^{(пр.)} n_{(пр.)}$.

На рис. 3 приведена экспериментально полученная зависимость $1/(n_1^* + n_2^*)$ от концентрации молекул примесного газа водорода. Очистка и напуск водорода в систему осуществлялись с использованием палладиевого натекателя. Экспериментальная установка не отличалась от описанной ранее в [6]. Изотропность первичного возбуждающего излучения достигалась путем использования лампы накачки специальной конструкции и отражательной системы. Пары цезия в кювете возбуждались светом резонансных линий выделяемых из спектра лампы накачки с помощью светофильтров. Концентрация возбужденных атомов в приосевых частях кюветы определялась методом поглощения на фоне спектральной линии от источника просвечивающего излучения. Концентрация молекул примесного газа определялась по показаниям термодатчика типа ВТ-3. Плотность нормальных атомов цезия рассчитывалась по температуре отростка с металлическим цезием.

Исследуем возможность существования линейной зависимости $1/(n_1^* + n_2^*) = f(n_{пр.})$ (рис. 3). Анализ уравнения (13) показывает, что необхо-

димым и достаточным условием этого является требование выполнения следующих соотношений:

$$\left. \begin{aligned} \eta &= \left(k_1 + k_{12}^{(np)} \frac{k_2 - k_1}{k_2 + k_{12}^{(np)} + k_{21}^{(np)}} \right) / \left(A_{эфф.}^{(1)} + k_{12}^{(Cs)} n^{(Cs)} \frac{k_2 - k_1}{k_2 + k_{12}^{(np)} + k_{21}^{(np)}} \right), \\ \eta &= \left(k_2 + k_{21}^{(np)} \frac{k_1 - k_2}{k_1 + k_{12}^{(np)} + k_{21}^{(np)}} \right) / \left(A_{эфф.}^{(2)} + k_{21}^{(Cs)} n^{(Cs)} \frac{k_1 - k_2}{k_1 + k_{12}^{(np)} + k_{21}^{(np)}} \right). \end{aligned} \right\} \quad (14)$$

Здесь η — наклон прямой линии зависимости $1/(n_1^* + n_2^*) = f(n_{np})$ с размерностью $см^{-3}$. Соотношение (14) можно затем использовать двумя спо-

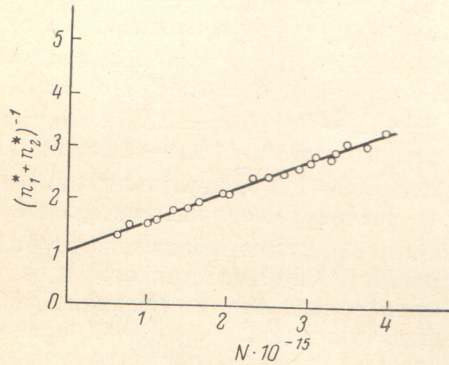


Рис. 3. Экспериментальная зависимость $1/(n_1^* + n_2^*)$ от концентрации молекул тушителя $N_{тущ.}$, нормированная на 1 при $N_{тущ.} = 0$.

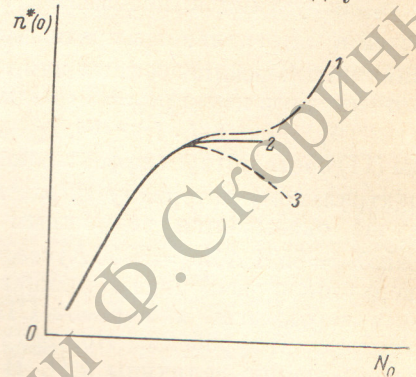


Рис. 4. Иллюстрация зависимости заселенности резонансно возбужденных уровней от концентрации поглощающих атомов при оптическом возбуждении в режиме переноса излучения для случаев: 1, 2, 3 (см. в тексте).

собами: зная значение констант скоростей столкновительных процессов передачи возбуждения, по наклону экспериментальной прямой находить значение $A_{эфф.}$ и затем по формуле (12) величину параметра Фойхта для обоих компонент резонансного дублета. И, наоборот, зная константы уширения спектральных линий, можно определять константы столкновительных неупругих процессов. Выражение (14) значительно упрощается при близких по величине значениях k_2 и k_1 — ситуация, вообще говоря, характерная для компонент тонкого расщепления резонансного термина щелочного атома [11]. В последнем случае выражения (14) переходят в соотношение для одиночной линии

$$\eta = 0.9 \frac{k_i}{A_{эфф.}^{(i)}}. \quad (15)$$

Коэффициент 0.9 в (15) связан с учетом отклонения приближенного решения уравнения (1) от истинного при $\tilde{W} \approx 1$.

Состояние	$A_{эфф.}, 10^5 \text{ с}^{-1}$ $\Delta A/A \leq \pm 6\%$	$\eta, 10^{-16} \text{ см}^{-3}$; $\Delta \eta/\eta \leq 20\%$	$\sigma_{3/2}/\sigma_{1/2}$; $\Delta \sigma_{отн.} \leq \pm 14\%$	$\sigma, 10^{-16} \text{ см}^2$	
				наши данные; $\Delta \sigma/\sigma \leq 26\%$	данные [15]
$P_{3/2}$	1.32	5.6	0.86	3.8	5 ± 2
$P_{1/2}$	1.53			4.4	7 ± 3

Примечание. Погрешность величины $A_{эфф.}$ определяется абсолютной погрешностью использованных данных для констант резонансного уширения линий цезия ($\pm 10\%$). О влиянии погрешности измерения n_0 на величину $A_{эфф.}$ см. в тексте. Основная погрешность в определении η связана с систематической ошибкой использованного метода определения давлений примесного газа (водорода) $\pm 20\%$. Как следует из соотношения (15), относительная погрешность определения отношения сечений σ не зависит от η .

В [12] были опубликованы результаты измерения констант резонансного уширения линий цезия в спектральном интервале, примыкающем к нашему (0.05–1 Å). Эти данные мы использовали для расчета $A_{эфф.}$ (см. таблицу) и последующего определения k_i по экспериментальным данным для η (15). При расчете $A_{эфф.}$ использовались данные для времен жизни возбужденных атомов из [13, 14]. В таблице приведены полученные таким образом значения эффективных сечений $\sigma_i = k_i \bar{v}^{-1}$ (водород), которые сравниваются с известными литературными данными. Абсолютная ошибка определения σ_i описанным выше методом определяется отступлением от линейной зависимости $1/(n_1^* + n_2^*) = f(n_{т.уш.})$, не превышающей в условиях эксперимента 4%, и точностью расчета $A_{эфф.}$. Погрешность, связанная с предположением одиночной линии (15), в нашем случае меньше 1%. Заметим, что при больших концентрациях атомов — партнеров по уширяющим столкновениям — резонансное уширение линии становится много больше ее естественной ширины и величина $A_{эфф.}$ становится

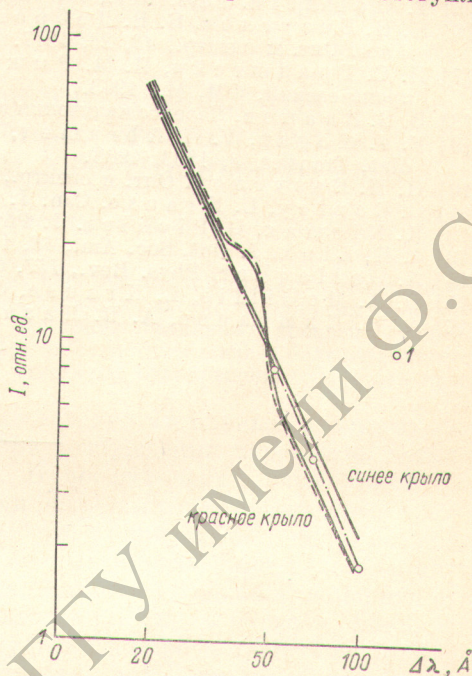


Рис. 5. Профиль самоуширенной резонансной линии цезия $\lambda = 8521 \text{ \AA}$ в области далекого статистического крыла.

Сплошная линия — контур линии поглощения по [12]. Штриховая (красное крыло) и штрихпунктирная (синее крыло) линии — эксперимент (флуоресценция); точки 1 соответствуют профилю синего крыла линии флуоресценции, рассчитанному по данным [12] с учетом экспоненциального множителя $e^{-\Delta E/kT}$.

независимой от концентрации поглощающих атомов. Уширение при столкновениях с молекулами примесного газа в нашем случае не играет заметной роли. Однако возможно дальнейшее развитие рассмотренной выше модели и для обратного случая. Отметим, например, возможность идентификации тушащих процессов типа: 1) $X^* + Y \rightarrow X + Y^*$, 2) $X^* + X \rightarrow X_2^* + h\nu$, 3) $X^* + X_2 \rightarrow X_2^* + X$, $X^* + 2X \rightarrow X_2^* + X$ в экспериментах типа [16] по характерным зависимостям $n_x^*(x)$ (рис. 4).

При больших концентрациях поглощающих атомов (в случае цезия при $N_0 > 10^{16} \text{ см}^{-3}$) по (11) в эффективный диапазон частот, определяющих выход излучения из объема, попадает область далекого статистического крыла самоуширенных резонансных линий, для которых характерно заметное отступление от дисперсионной формы контура. Более того в этой области $\Delta\lambda$ контур линии поглощения начинает отличаться от контура линии испускания, поскольку в последнем случае выражение для профиля более коротковолновых (синих) крыльев линии содержат множитель типа $e^{x\lambda/(kT)}$, где kT — температура среды. Это иллюстрируется данными рис. 5, на котором приведены результаты наших измерений асимметрии профиля самоуширенной линии Cs $\lambda = 8521 \text{ \AA}$ в спектре флуоресценции оптически плотных паров (о методике таких измерений см. в [15]). Для области далекого статистического крыла возможность использования приближения (5) требует специального рассмотрения.

Выше были определены условия, когда приближение Бибермана может быть корректно использовано при количественной обработке результатов экспериментов по оптическому возбуждению поглощающей среды в режиме переноса излучения. Такой подход может оказаться полезным

при количественных исследованиях слабых эффектов тушения резонансного излучения, например в смесях щелочные атомы + инертные газы.

Авторы выражают признательность Н. П. Пенкину за полезные обсуждения.

Литература

- [1] М. И. Дьячков, В. И. Перель. ЖЭТФ, 47, 1483, 1964.
- [2] В. И. Перель, Н. В. Рогова. ЖЭТФ, 61, 1814, 1971.
- [3] В. И. Перель, Н. В. Рогова. ЖЭТФ, 65, 1012, 1973.
- [4] Л. М. Биберман. ДАН, 59, 659, 1948.
- [5] T. Holstein. Phys. Rev., 72, 1212, 1947.
- [6] Н. Н. Безуглов, Б. В. Добролеж, А. Н. Ключарев, В. Ю. Семан. Опт. и спектр., 43, 23, 1977.
- [7] Н. С. Градштейн, И. М. Рыжик. Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений. ФМ, М., 1963.
- [8] В. В. Иванов. Перенос излучения и спектры небесных тел. «Наука», М., 1969.
- [9] V. J. Kogan, V. A. Abramov, V. P. Vasil'ev. J. Quant. Spectr. Radiat. Transfer, 8, 1833, 1968.
- [10] Н. Н. Безуглов. Опт. и спектр., 43, 418, 1977.
- [11] G. Sopley, L. Krause. Can. J. Phys., 47, 533, 1969.
- [12] K. Niemax, G. Pichler. J. Phys. B., 7, 2355, 1974.
- [13] J. K. Link. J. Opt. Soc. Am., 56, 1195, 1966.
- [14] A. Gallagher. Phys. Rev., 157, 68, 1967.
- [15] D. A. McGillis, L. Krause. Can. J. Phys., 46, 1051, 1968.
- [16] А. Н. Ключарев, А. В. Лазаренко. Опт. и спектр., 32, 1063, 1972.

Поступило в Редакцию 29 ноября 1979 г.
