

ОБОСНОВАНИЕ ВЕКТОРНОЙ МОДЕЛИ СТОЛКНОВИТЕЛЬНОГО ПЕРЕНОСА ОРИЕНТАЦИИ И ЕЕ ОБОБЩЕНИЕ НА СЛУЧАЙ СТОЛКНОВИТЕЛЬНЫХ ПЕРЕХОДОВ МЕЖДУ УРОВНЯМИ ТОНКОЙ СТРУКТУРЫ

А. Г. Петрашень, В. Н. Ребане и Т. К. Ребане

Дается квантовомеханическое обоснование полуклассической векторной модели для описания столкновительного переноса ориентации между уровнями сверхтонкой структуры. Показывается, что при селективном возбуждении одного выделенного уровня F циркулярно поляризованным светом степень поляризации сенсублизированной флуоресценции с уровня $F_1 \neq F$ целиком определяется квантовыми числами J , I , F и F_1 и не зависит от каких-либо динамических характеристик столкновений. Предложено обобщение векторной модели на случай узких мультиплетов тонкой структуры и произведены расчеты столкновительного переноса ориентации между составляющими 3^2P -дублета натрия под действием столкновений с инертными газами.

В работе [1] была предложена полуклассическая векторная модель для описания столкновительного переноса ориентации между компонентами сверхтонкой структуры (СТС) атомных уровней. Здесь дается квантовомеханическое обоснование этой модели и производится ее обобщение на случай узких мультиплетов тонкой структуры.

Применительно к СТС векторная модель предполагает, что до столкновения векторы ядерного спина \mathbf{I} , электронного момента \mathbf{J} и суммарного момента \mathbf{F} , имеющие соответственно длины $\sqrt{I(I+1)}$, $\sqrt{J(J+1)}$ и $\sqrt{F(F+1)}$, образуют треугольник, вершина A которого прецессирует с периодом $\tau_{\text{прец.}} = 1/\nu_{\text{СТС}}$ вокруг вектора \mathbf{F} (см. рисунок), где $\nu_{\text{СТС}}$ — частота, соответствующая ширине мультиплета СТС. Пусть выполняется неравенство

$$\tau_{\text{столк.}}/\tau_{\text{прец.}} \ll 1, \quad (1)$$

где $\tau_{\text{столк.}} = R/v$ — продолжительность столкновения, v — относительная скорость, R — радиус сферы, внутри которой энергия взаимодействия сталкивающихся частиц вызывает переориентацию электронного момента \mathbf{J} . Тогда можно считать, что ориентация вектора \mathbf{I} за время столкновения не изменяется (так называемый принцип инерции ядерного спина [2, 3]). Пусть атом при столкновении перейдет с уровня СТС F на уровень F_1 . Тогда образуется новый треугольник из векторов \mathbf{I} , \mathbf{J} и \mathbf{F}_1 , имеющий одну общую сторону — вектор \mathbf{I} — с исходным векторным треугольником.

После усреднения по углам вращения вектора \mathbf{F}_1 вокруг вектора \mathbf{I} и вектора \mathbf{I} вокруг вектора \mathbf{F} найдем следующую связь между коэффициентами столкновительного переноса ориентации $\Gamma_{FF_1}^{(1)}$ и заселенности $\Gamma_{FF_1}^{(0)}$:

$$\Gamma_{FF_1}^{(1)} = \Gamma_{FF_1}^{(0)} \cos \theta_F \cos \theta_{F_1}, \quad (2)$$

θ_F и θ_{F_1} — углы между вектором \mathbf{I} и суммарным моментом \mathbf{F} или \mathbf{F}_1 . При этом

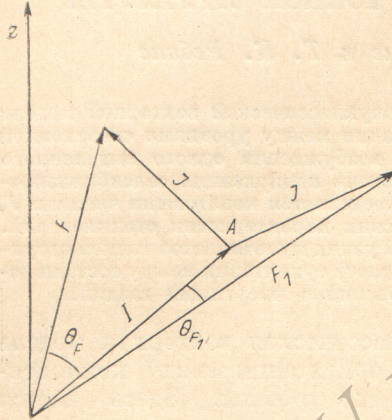
$$\cos \theta_F = [F(F+1) + I(I+1) - J(J+1)]/2\sqrt{I(I+1)F(F+1)}. \quad (3)$$

Заменив здесь F на F_1 , получим выражение для $\cos \theta_{F_1}$.

В работе [1] было найдено, что полуклассическая формула (2) хорошо согласуется с квантовомеханическими расчетами, особенно при $I \geq J$. Для теоретического обоснования векторной модели необходимо произвести исследование точного квантовомеханического выражения для коэффициента переноса когерентности между уровнями СТС

$$\Gamma_{FF_1}^{(K)} = -(2F+1)(2F_1+1) \sum_x (2x+1) \left\{ \begin{matrix} J & F & x \\ K & I & F \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} J & F_1 & x \\ K & I & F_1 \end{matrix} \right\} \times \\ \times \dots \sum_x (2x+1) \left\{ \begin{matrix} J & F & x \\ I & x & J \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} J & F_1 & x \\ I & x & J \end{matrix} \right\} \gamma^{(x)}, \quad (4)$$

где K — ранг когерентности, фигурные скобки обозначают $6j$ -символы, а $\gamma^{(x)}$ — постоянные столкновительной релаксации электронных поляризационных моментов. Положив $K=0$ и учитывая свойства $6j$ -символов [4], получим для коэффициента переноса заселенности выражение



$$\Gamma_{FF_1}^{(0)} = (-1)^{F_1-F+1} \sqrt{(2F+1)(2F_1+1)} \times \\ \times \sum_x (2x+1) \left\{ \begin{matrix} J & F & I \\ I & x & J \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} J & F_1 & I \\ I & x & J \end{matrix} \right\} \gamma^{(x)}. \quad (5)$$

При $K=1$ формула (4) дает коэффициент переноса ориентации. Расписав в явном виде сумму по x и произведя стандартные преобразования $6j$ -символов, получим с учетом формул (3) и (5)

$$\Gamma_{FF_1}^{(1)} = \cos \theta_F \cos \theta_{F_1} \Gamma_{FF_1}^{(0)} + \Delta(I, J, F, F_1). \quad (6)$$

Первое слагаемое в правой части совпадает с правой частью полуклассической формулы (2). Второе слагаемое представляет собой квантовую поправку к формуле (2) и равняется

$$\Delta(I, J, F, F_1) = [(-1)^{F_1-F+1}/(2I+1)] \sum_{s=0}^I f(I+s, J, F) f(I+s, J, F_1) \times \\ \times \sum_x (2x+1) \left\{ \begin{matrix} I+s-1 & I+s & x \\ J & J & F \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} I+s-1 & I+s & x \\ J & J & F_1 \end{matrix} \right\} \gamma^{(x)}. \quad (7)$$

Введено обозначение

$$f(I, J, F) = \left[\frac{(2F+1)(I+J+F+1)(I+F-J)(J+F-I+1)(I+J-F)}{4I(F+1)F} \right]^{1/2}. \quad (8)$$

Из (7) и (8) видно, что при $I \geq J$ квантовая поправка исчезает в случае переноса ориентации между двумя крайними уровнями мультиплета СТС, характеризующимися суммарными моментами $I+J$ и $I-J$. В остальных случаях эта поправка, вообще говоря, отлична от нуля и формула (2) носит приближенный характер.

Оценим точность формулы (2) в случае произвольных I, J и $F \neq F_1$. Исследование столкновительной релаксации электронных поляризационных моментов показывает [5-9], что величины $\gamma^{(x)}$ с $x > 0$ мало отклоняются от

своего среднего значения $\bar{\gamma} = \sum_{x=1}^{2j} \gamma^{(x)}/2j$: разности $\delta\gamma^{(x)} = \gamma^{(x)} - \bar{\gamma}$ имеют при $x > 0$ порядок величины $\bar{\gamma}/10$. В то же время величина $\gamma^{(0)}$ на несколько порядков меньше $\bar{\gamma}$, так что в очень хорошем приближении

$\delta\gamma^{(0)} = -\bar{\gamma}$. Сделаем в (5) подстановку $\gamma^{(x)} = \bar{\gamma} + \delta\gamma^{(x)}$ и учтем тождество, справедливое при $F \neq F_1$

$$\sum_x (2x+1) \begin{Bmatrix} J & F & I \\ I & x & J \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J & F_1 & I \\ I & x & J \end{Bmatrix} = 0. \quad (9)$$

В результате получим для коэффициента переноса заселенности

$$\Gamma_{FF_1}^{(0)} = \frac{\sqrt{(2F+1)(2F_1+1)}}{(2I+1)(2J+1)} \bar{\gamma} - (-1)^{F_1-F} \sqrt{(2F+1)(2F_1+1)} \times \\ \times \sum_{x \geq 1} (2x+1) \begin{Bmatrix} J & F & I \\ I & x & J \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J & F_1 & I \\ I & x & J \end{Bmatrix} \delta\gamma^{(x)}. \quad (10)$$

Аналогичная подстановка в (7) приводит к следующему выражению для коэффициента переноса ориентации:

$$\Gamma_{FF_1}^{(1)} = \cos \theta_F \cos \theta_{F_1} \Gamma_{FF_1}^{(0)} - \frac{(-1)^{F_1-F}}{2I+1} \sum_{s=0}^1 f(I+s, J, F) f(I+s, J, F_1) \times \\ \times \sum_{x \geq 1} (2x+1) \begin{Bmatrix} I+s-1 & I+s & x \\ J & J & F \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} I+s-1 & I+s & x \\ J & J & F_1 \end{Bmatrix} \delta\gamma^{(x)}. \quad (11)$$

Из (10) видно, что $\Gamma_{FF_1}^{(0)}$ имеет при малых $\delta\gamma^{(x)}$ порядок величины $\bar{\gamma}$. Поэтому в выражении для коэффициента переноса ориентации (11) главным членом является первое слагаемое в правой части, в точности соответствующее полуклассической векторной модели. Второе слагаемое в (11) имеет порядок величины $\delta\gamma^{(x)} \sim \bar{\gamma}/10$. Это и обеспечивает удовлетворительную точность формулы (2) при произвольных $I, J, F \neq F_1$.

В работе [1] отмечалось, что точность численных расчетов коэффициентов переноса ориентации по формуле (2) быстро растет с ростом ядерного спина I . Это нетрудно понять на основе исследования структуры формулы (11). Действительно, с учетом формулы (8) получим, что второе слагаемое в правой части (11) имеет при $I \gg J$ порядок величины $1/I$. Поэтому с ростом ядерного спина точность векторной модели повышается, и при $I \rightarrow \infty$ эта модель будет точной независимо от малости величин $\delta\gamma^{(x)}$.

Условием динамической обоснованности нашего подхода является выполнение неравенства (1). Принимая для радиуса действия сил значенные $R \approx 10^{-7}$ см, согласующиеся с теорией и с опытом [10], получаем для продолжительности столкновения атома Na с He $\tau_{\text{столк.}} \sim 0.5 \cdot 10^{-12}$ с, а Na с Xe $\tau_{\text{столк.}} \sim 1.4 \cdot 10^{-12}$ с (при 450 К). Период прецессии, соответствующий СТС 3^2P -дублета Na, $\tau_{\text{прец.}} \sim 5 \cdot 10^{-9}$ с. Поэтому для переходов между уровнями СТС условие (1) выполняется очень хорошо.

Все сказанное является обоснованием полуклассической векторной модели и ее основного следствия — формулы (2). Существенно, что в эту формулу не входят никакие динамические характеристики процесса столкновения. Поэтому она свободна от неизбежных погрешностей, связанных с приближенным характером теоретических расчетов постоянных релаксации электронных мультипольных моментов $\gamma^{(x)}$. Более того формула (2) пригодна для описания переноса ориентации под действием любого изотропного внешнего возмущения, например флуктуирующего электрического поля, если характерное время переориентации электронного момента мало по сравнению с периодом прецессии (см. формулу (1)).

Отметим еще одно важное следствие из формулы (2). Пусть производится селективное возбуждение уровня СТС F светом, поляризованным по кругу. Тогда степень круговой поляризации сенсibilизированной

флуоресценции, испускаемой атомом с уровня $F_1 \neq F$, пропорциональна величине $\Gamma_{FF}^{(1)}/\Gamma_{FF}^{(0)}$, которая легко вычисляется с помощью формулы (2) и зависит только от моментов I, J и $F_1 \neq F$, но вообще не зависит от детальных характеристик столкновений или иного процесса изотропной релаксации.

В заключение заметим, что векторную модель можно обобщить на случай узких мультиплетов тонкой структуры, для которых период прецессии, соответствующий мультиплетному расщеплению, велик по сравнению с продолжительностью столкновения. Для этого достаточно в формулах (2) и (3) заменить ядерный спин I на электронный спин S , полный электронный момент J на электронный орбитальный момент L и суммарный момент F на полный электронный момент J .

В настоящее время нет экспериментальных данных о столкновительном переносе когерентности между компонентами достаточно узких тонких мультиплетов. В то же время подробно изучен сравнительно широкий 3^2P -дублет натрия, для которого $\Delta\nu = 17 \text{ см}^{-1}$, так что отношение $\tau_{\text{голл.}}/\tau_{\text{прец.}}$ составляет ~ 0.3 для столкновений Na с He и ~ 0.7 для столкновений Na с Xe. Хотя в данном случае условие (1) выполняется довольно плохо, результаты расчетов сечений столкновительного переноса ориентации между уровнями тонкой структуры, произведенных нами в рамках векторной модели (см. таблицу), хорошо согласуются с опытом [11]. Еще лучшего согласия можно ожидать для узких мультиплетов тонкой структуры с $\Delta\nu < 3 \text{ см}^{-1}$, для которых хорошо выполняется условие (1).

Эффективные сечения столкновительного переноса ориентации между $3^2P_{1/2}$ - и $3^2P_{3/2}$ -состояниями натрия, рассчитанные по векторной модели с использованием экспериментальных значений эффективных сечений переноса заселенности

x		He	Ne	Ar	Kr	Xe
0	Эксперимент	73.9 ± 4	56.8 ± 5	90.7 ± 6	80.5 ± 4	72.6 ± 6
1	Эксперимент	-21 ± 3	-12.9 ± 2	-26.2 ± 4	-19.7 ± 3	-15.1 ± 6
1	Векторная модель	-18.3	-14.1	-22.5	-20.0	-18.0

Примечание. Эффективные сечения $\sigma_{1/2 \rightarrow 3/2}^{(x)} = \Gamma_{1/2 \rightarrow 3/2}^{(x)}/n\bar{v}$, где n плотность инертного газа, \bar{v} — относительная скорость, выражены в 10^{-16} см^2 . Экспериментальные значения эффективных сечений взяты из работы [11]. Так как рассматриваемые нами сечения симметричны: $\sigma_{1/2 \rightarrow 3/2}^{(x)} = \sigma_{3/2 \rightarrow 1/2}^{(x)}$, то экспериментальные сечения, приведенные в таблице, являются геометрическими средними из эффективных сечений переноса $1/2 \rightarrow 3/2$ и $3/2 \rightarrow 1/2$, измеренных в [11].

Главным достоинством векторной модели является ее простота и наглядность, а также большая предсказательная сила формулы (2), позволяющей выразить степень круговой поляризации сенсibilизированной флуоресценции через чисто кинематические характеристики атомных состояний, определяемые алгеброй моментов количества движения.

Авторы благодарят Е. И. Дашевскую за полезные критические замечания.

Литература

- [1] А. Г. Петрашень, В. Н. Ребана, Т. К. Ребана. Опт. и спектр., 39, 6, 1975.
- [2] В. R. Bulos, W. Harper. Phys. Rev., A4, 849, 1971.
- [3] С. С. Cohen-Tannoudji. Comments Atom. and Mol. Phys., 2, 24, 1970.

- [4] А. П. Юцис, А. А. Бандзайтис. Теория момента количества движения в квантовой механике. Изд. «Минтис», Вильнюс, 1965.
- [5] J. P. Fagoux, J. Grosset. Compt. Rend., 263B, 612, 1966.
- [6] В. Н. Ребане. Опт. и спектр., 24, 297, 1968.
- [7] Е. П. Гордеев, Е. Е. Никитин, М. Я. Овчинникова. Опт. и спектр., 30, 189, 1971.
- [8] А. И. Окуневич, В. И. Перель. ЖЭТФ, 58, 666, 1970.
- [9] А. Г. Петрашень, В. Н. Ребане, Т. К. Ребане. Опт. и спектр., 35, 408, 1973.
- [10] Е. Е. Никитин, А. И. Бурштейн. В сб.: Газовые лазеры, под редакцией Р. И. Солоухина и В. П. Чеботаева. «Наука», Новосибирск, 1977.
- [11] J. C. Gay, W. B. Schneider. Zs. Phys., A278, 241, 1976.

Поступило в Редакцию 31 марта 1980 г.

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ имени Ф. Скорини