

УДК 539.184

РАСПАД РЕЗОНАНСНЫХ СОСТОЯНИЙ АТОМОВ В ЦИЛИНДРИЧЕСКОМ ОБЪЕМЕ ГАЗА КОНЕЧНЫХ РАЗМЕРОВ. I

Н. Н. Безуглов

В рамках теории Бибермана—Холстейна рассматриваются некоторые закономерности нестационарного процесса пленения резонансного излучения. Выясняются условия, при которых временное поведение интенсивности регистрируемого излучения описывается одноэкспоненциальным членом. При средних значениях оптической толщины φ_0 поглощающей среды отмечается возможность сложной структуры кривой послесвечения и дается способ расчета наклона ее начального и конечного линейных участков.

Анализ излучения, испускаемого ансамблем распадающихся возбужденных состояний атома, дает важную информацию о физических процессах взаимодействия внутри атомных систем. Явление захвата квантов света нормальными атомами конкурирует с другими элементарными процессами, определяющими характер и скорость девозбуждения верхних, высвечивающих фотоны уровней рассматриваемой системы. Классический метод учета явления пленения резонансного излучения [1] пригоден для анализа экспериментальных кривых послесвечения лишь по прошествии некоторого времени релаксации T_p , когда ансамбль резонансно возбужденных состояний начинает распадаться как единое целое $n^*(x, t) \approx C_0 \varphi_0(x) \exp(-A_0 \lambda_0 t)$. Характерное время распада $T_{\text{эф}}^{(n)} \equiv (A_0 \lambda_0)^{-1}$ соответствует времени затухания амплитуды фундаментальной моды интегрального уравнения пленения [1].

В настоящей работе рассматривается процесс релаксации к фундаментальному распределению $\varphi_0(x)$ начальной пространственной плотности $n_0^*(x) \equiv n^*(x, t=0)$ возбужденных частиц, сформированных в объеме газа к моменту выключения источников возбуждения. Сразу отметим, что в результате радиационного переноса возбуждения, процесс сглаживания по пространству резко неоднородного распределения $n_0^*(x)$ до фундаментального имеет многомодовый временной характер. Как следствие, возможно значительное усложнение структуры анализируемых в эксперименте временных зависимостей исследуемых физических величин в интервале релаксации $0 < t < T_p$. Последний может охватывать начальный, наиболее информативный участок экспериментальных данных.

При описании взаимодействия резонансного излучения с веществом примем двухуровневую модель и будем предполагать выполнимость принципа полного перераспределения по частотам. В рамках последнего справедливо кинетическое уравнение Бибермана—Холстейна [1, 2]

$$\frac{dn^*}{dt} = -(A_0 + A_1 + W)n^*(x, t) + \alpha(x, t) + A_0 \int_V d^3\xi K(|x - \xi|). \quad (1)$$

Обсуждение фигурирующих в (1) величин имеется в работе [3], к некоторым результатам которой мы будем обращаться в дальнейшем; A_0 — вероятность перехода с резонансного уровня в основное состояние, W — полная вероятность тушения. Запись ядра интегрального члена уравнения (1) согласована с обозначениями [4].

1. Определение времени релаксации T_p удобно выполнить с помощью метода Фурье. Процесс распада возбужденных состояний ($\alpha \equiv 0$) описывается соотношениями

$$n^*(x, t) = \sum_{m=0}^{\infty} C_m \exp[-(\lambda_m A_0 + A_1 + W)t] \varphi_m(x); \quad (2)$$

$$\int_V d^3\xi [\delta^3(x - \xi) - K(|x - \xi|)] \varphi_m(\xi) = \lambda_m \varphi_m(x). \quad (3)$$

Собственные функции (моды) φ_m и собственные числа λ_m ($\lambda_0 < \lambda_1 < \dots$) находятся из (3), а коэффициенты разложения C_m даются начальным распределением $n_0^*(x)$. Время T_p релаксации ряда (2) к одномодовому режиму ($m=0$) можно качественно оценить из требования преобладания первого члена ($m=0$) суммы (2) над следующей за ним наиболее долгоживущей модой ($m=1$): $|C_1(T_p)/C_0(T_p)| = \varepsilon$, т. е.

$$T_p = T_{эфф}^{(H)} \frac{1}{\lambda_1/\lambda_0 - 1} \ln \left(\frac{|C_1|}{|C_0| \varepsilon} \right); \quad T_{эфф}^{(H)} \equiv \frac{1}{\lambda_0 A_0}. \quad (4)$$

В (4) предполагается существование лишь канала пленения. $A_1 + W = 0$; величина ε дает относительное отклонения члена ($m=0$) от суммы (2). Допускаемые здесь отрицательные значения T_p означают реализацию указанного режима распада $|T_p|$ единиц времени тому назад.

Пусть L — характерный размер объема газа. В математической литературе [5, 6] для собственных функций (3) при $m \gg 1$ доказывается принцип нечувствительности границы. За исключением пограничного слоя толщиной $\sim L/m$, моды φ_m оказываются близкими к обладающим нужной симметрией собственным функциям всего пространства ($L = \infty$). Этот факт приводит к выполнению правила квантования [7, 8]. В элементе объема Ldp Фурье—пространства число собственных состояний dN есть $Ldn/(2\pi)$. Таким образом $p_m = \pm 2\pi(m+1)L^{-1}$ и согласно (3)

$$\lambda_m = 1 \mp V \left(\frac{2\pi(m+1)}{L} \right). \quad (5)$$

Функция $V(|p|)$ — Фурье—образ ядра $K(|x|)$. Формула (5) является приближенной, однако, для качественных оценок типа (4) ее применение вполне оправдано.

2. Исследуем случай больших оптических толщин $k_0 L \gg 1$, когда перенос излучения осуществляется за счет крыльев линии. При этом становится возможным применение в (5) асимптотического представления для $1-V(p)$ из [4], в соответствии с которым $\lambda_m \lambda_0 = (1+m)^{2\gamma}$. Число γ является спектральным параметром, характеризующим форму крыльев линии: $\gamma_D = 0.5$ для доплеровского и $\gamma_L = 0.25$ для лорентцовского контуров. Наибольшей величины T_p достигает при деформации начального δ -образного распределения в фундаментальное.

При этом $n_0^*(x) = \delta^3(x - x_0) = \sum_0^{\infty} \varphi_m^+(x_0) \varphi_m(x)$; $C_m = \varphi_m^+(x_0)$ и, в силу (4), $T_p \approx T_{эфф}^{(H)}$. Реализация единого одноэкспоненциального затухания значений физических величин в объеме газа происходит за время порядка эффективного времени жизни резонансного уровня атома.

Чтобы получить более детальную информацию, приведем найденное нами аналитическое решение модельной задачи по пространственно-временному поведению плотности $n_k^*(r, \rho; t)$ возбужденных состояний, первоначально локализованных на поверхностях $S_k(\rho)$ типа а) сферы: $x^2 + y^2 + z^2 = \rho^2$, $k=3$; б) цилиндрической поверхности: $x^2 + y^2 = \rho^2$, $k=2$; в) поверхности плоского слоя: $x^2 = \rho^2$, $k=1$. Плотность n^* фиксируется в точке наблюдения, расположенной на поверхности $S_k(r)$. При условии удаленности $S_k(\rho)$ и $S_k(r)$ от границы области решение подобной задачи для бесконечного пространства позволяет определить характерное время распространения возбуждения за счет диффузии ре-

зонального излучения в реальных кюветах с газом. В случае доплеровского контура, неограниченного пространства и условия $A_1 + W = 0$

$$n_k^*(r, \rho; t) = \hat{\alpha}_0 \frac{\rho^{k-1}}{R^k} \tau \frac{1 - \Delta}{(1 - t_0 \Delta^2)^2} g_k(t_0^2 \Delta^2); \quad \tau \frac{t}{\hat{T}_{\text{эфф}}}; \quad (6)$$

$$\hat{T}_{\text{эфф}} = \hat{\alpha}_0 \sqrt{\pi \ln(\hat{\alpha}_0)} 4/(\pi A_0); \quad \hat{\alpha}_0 = k_0 |r - \rho|; \quad (7)$$

$$g_k(\eta) = \begin{cases} 4\pi^{-1} t_0^2 & k=3 \\ t_0^{1.5} [F(0.5, 0.5; 1; \eta)(1 - \eta) + F(0.5, 0.5; 2; \eta)\eta]; & k=2; \end{cases} \quad (8)$$

$$t_0 = 0.5 + \frac{(1 - \Delta)^2 \tau^2}{2\Delta^2} - \sqrt{\left[0.5 + \frac{(1 - \Delta)^2 \tau^2}{2\Delta^2}\right]^2 - \frac{1}{\Delta^2}}, \quad (9)$$

где F — гипергеометрическая функция [9], $R = \max\{r, \rho\}$. Здесь предполагается большая оптическая удаленность $\hat{\alpha}_0 \gg 1$ места регистрации излучения (r)

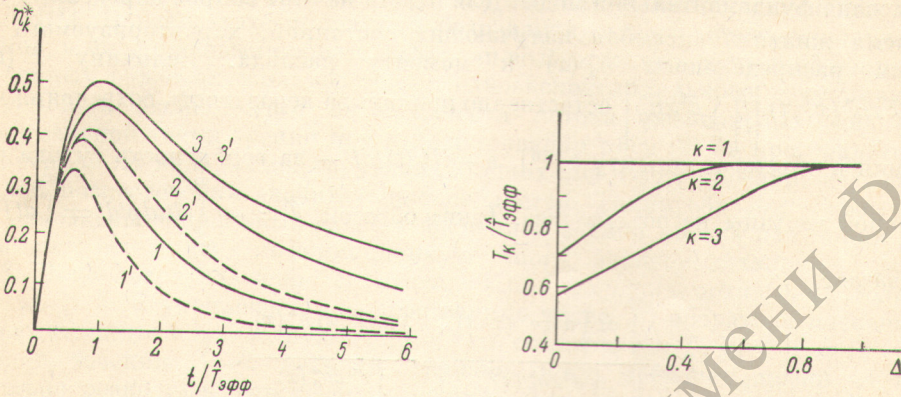


Рис. 1. Временное изменение плотности возбужденных частиц в точке наблюдения (r) после вспышки на излучающей поверхности $S_k(\rho)$.

Сплошным кривым соответствует цилиндрическая поверхность $k=2$, штриховым — сферическая $k=3$; 1, 1' — $\Delta=0$; 2, 2' — $\Delta=0.5$; 3, 3' — $\Delta=1$. Масштаб кривых произволен и выбран из соображения удобства их сравнения.

Рис. 2. Зависимость времени распространения возбуждения от взаимного расположения излучающей поверхности и места наблюдения.

Единицей измерения времени служит величина $\hat{T}_{\text{эфф}}$ (7).

от поверхности возбуждения $S_k(\rho)$. Как следствие, решение (6)–(9) описывает распространение вспышки на $S_k(\rho)$ в поглощающей среде газа. Параметр $\hat{\alpha}_0$ дает число излучающих атомов на единице площади $S_k(\rho)$. Геометрический фактор $\Delta = \min\{r/\rho, \rho/r\} = 1 - |r - \rho| / [\max\{r, \rho\}]$ определяет степень отступления конфигурации поверхности излучения $S_k(\rho)$, воспринимаемой в точке наблюдения (r), от плоскости. Вывод приведенных формул требует развития специальной техники и приводиться здесь не будет.

Соотношения (6)–(9) упрощаются в двух предельных случаях. Условие $\Delta \rightarrow 1$ соответствует малому относительному расстоянию (r) и $S_k(\rho)$, т. е. вырождению к случаю плоской конфигурации $S_k(\rho)$ ($k=1$)

$$n_k^*(r, \rho; t) \underset{\Delta \rightarrow 1}{\approx} \hat{\alpha}_0 \frac{\rho^{k-1}}{R^k} \frac{1}{\pi(1 - \Delta)} \frac{\tau}{1 + \tau^2}. \quad (10)$$

При другом условии $\Delta \rightarrow 0$

$$n_k^*(r, \rho; t) \underset{\Delta \rightarrow 0}{\approx} \hat{\alpha}_0 \frac{\rho^{k-1}}{R^k} \frac{2\Gamma(0.5 + k/2)}{\sqrt{\pi} \Gamma(k/2)} \frac{\tau}{(1 + \tau^2)^{0.5 + k/2}} \quad (11)$$

существенна геометрия $S_k(\rho)$; Γ — гамма-функция. На рис. 1 изображен временной ход $n^*(r, \rho; t)$ при разных значениях геометрического фактора Δ , а также при разных конфигурациях $S_k(\rho)$. При $\Delta \rightarrow 1$ поверхность излучения воспринимается как плоская.

Естественной мерой длительности распространения возбуждения от вспышки на $S_k(\rho)$ в точку (r) может служить временная точка достижения \max заселен-

ности на кривых рис. 1. Ее величина $T_k(r, \rho)$ имеет тесную связь с введенным ранее временем релаксации T_p . Действительно, при фундаментальном распределении излучающих состояний атома все точки объема характеризуются затуханием заселенности n^* . Такой одномодовый режим будет реализован в момент начала спада концентрации n^* в периферийных точках области, наиболее удаленных от места $S_k(\rho)$ локализации начального возбуждения: $T_p \approx T_k(r, \rho)$ при $z_0 = k_0 L$. На рис. 2 представлены значения экстремальных точек T_k кривых типа рис. 1, рассчитанных для распределения (6) при разных значениях геометрического фактора Δ . Данные рис. 2 позволяют выписать равенства $T_p \approx T_k \approx \hat{T}_{\text{эфф}}$ ($k_0 L$) с точностью до порядка величин. Согласно [1], это соответствует утверждению $T_p \approx T_{\text{эфф}}^{(n)}$, сделанному выше на основании анализа (4).

3. Интересен вопрос о полном числе возбужденных атомов, сохранившихся в объеме V газа к моменту $t = T_p$ выхода системы на одноэкспоненциальный режим распада фундаментальной моды. Для ответа на этот вопрос определим среднее время жизни \bar{T} ансамбля излучающих состояний, характеризуемого начальным распределением $n_0^*(x)$ к моменту распада. Величину $P(t) = \left[\int_V d^3x n^*(x, t) \right] / \left[\int_V d^3x n_0^*(x) \right]$ естественно принять за вероятность сохранения возбуждения в объеме к моменту t [10], а $-dP(t)/dt$ — за вероятность ухода возбужденной частицы из объема газа. Таким образом, $\bar{T} = - \int_0^\infty dt t dP/dt = \int_0^\infty dt P(t)$,

что означает

$$\bar{T} = \frac{\int_0^\infty dt \int_V d^3x n^*(x, t)}{\int_V d^3x n_0^*(x)} = \frac{\int_V d^3x \bar{T}(x) n_0^*(x)}{\int_V d^3x n_0^*(x)}. \quad (12)$$

В (12) последнее равенство выражает принцип суперпозиции для линейного уравнения (1), согласно которому $n^*(x, t) = \int_V d^3x' G(x, x'; t) x n_0^*(x)$ и $\bar{T}(x') = \int_0^\infty dt \int_V d^3x G(x, x'; t)$. Здесь $G(x, x'; t)$ — временная функция Грина уравнения (1).

Величина $\bar{T}(x')$ дает среднее время жизни излучающего атома, возникшего в точке x' кюветы с газом. В (12) достаточно положить $n_0^* = \delta^3(x - x')$. Получим простое уравнение для функции $\bar{T}(x')$, которая является важной локальной характеристикой нестационарного процесса пленения излучения. Подействуем на $\bar{T}(x')$ правой частью однородного уравнения (1) ($\alpha = 0$). При подобной операции функция Грина $G \rightarrow dG/dt$ и $\bar{T}(x') \rightarrow \int_0^\infty dt \int_V dx dG/dt = -1$. Таким образом,

$$(A_0 + A_1 + W) \bar{T}(x) - A_0 \int_V d^3\xi K(|x - \xi|) \bar{T}(\xi) = 1. \quad (13)$$

Оценку среднего времени жизни $\bar{T}(x)$ (13) можно получить на основании приближения Бибермана [11]. $\bar{T}^{-1}(x) = A_{\text{эфф}}(x) + A_0 + A_1$, где $A_{\text{эфф}}(x) = A_0 \left[1 - \int_V d^3\xi K(|x - \xi|) \right]$ имеет смысл вероятности свободного ухода за пределы кюветы фотона, испущенного в (x) . Исследование применимости указанного приближения для (13) имеется в [12], а также в [8], где получены явные асимптотические выражения ($k_0 L \gg 1$) решения (13) применительно к ряду конфигураций объема газа.

Оказывается, что во внутренних точках объема $A_{\text{эфф}}$ по порядку величины согласуется с выражением $\hat{T}_{\text{эфф}}^{-1}$ (7) для $z_0 \approx k_0 L$. Таким образом, при локализованном распределении $n_0^*(x)$ во внутренних областях кюветы выполняется це-

почка оценок $T_p \approx T_{\text{эфф}}^{(H)} \approx \bar{T}(x)$. Одномодовый, удобный для интерпретации экспериментальных данных режим затухания реализуется при довольно существенном объединении общего содержания исследуемых резонансных состояний.

Сделанные выше выводы хорошо иллюстрируются имеющимся в [2] расчетным материалом по временному изменению радиального распределения заселенности $n^*(r, t)$ в условиях, характерных для камеры возбуждения с электронной пушкой. Здесь же [3] обсуждается возможная схема регистрации света из тонкого слоя по диаметру цилиндрической камеры с газом, когда оптическая система осуществляет равноправный сбор излучения из радиальных точек камеры. Форма кривой послесвечения оказывается наиболее чувствительной к деформации пространственного профиля n^* в пристеночных областях, оптически мало удаленных от места сбора излучения. Вклад оптически удаленных точек в регистрируемый поток фотонов плавно зависит от места испускания кванта света [13]. В результате становится безразличным расположение излучающих атомов, и многомодовый процесс диффузии возбужденных состояний в оптически удаленных областях «смазывается» к одноэкспоненциальному затуханию фиксируемой в эксперименте интенсивности потока резонансных квантов [3]. С формальной точки зрения при интегрировании ряда (2) по пространственной переменной « x » вклад осциллирующих высших мод в формирование исследуемой кривой послесвечения значительно ослабляется. Таким образом, оказывается, что одноэкспоненциальный «хвост» временной записи потока излучения может занимать основную, информационную часть экспериментальных данных.

4. Подобное заключение справедливо при больших оптических толщинах $x_0 = k_0 L \geq 5$. С уменьшением x_0 собственные числа (5) оператора пленения начинают сливаться друг с другом ($\lambda_m \rightarrow 1$) и, согласно (4), $T_p \approx T_{\text{эфф}}^{(H)} \approx A_0^{-1}$. Более того, в течении 1—2 величин радиационного времени жизни A_0^{-1} первоначально резко пространственно локализованное распределение n_0^* (кривая 1, рис. 3) не успевает существенно изменить своего пространственного профиля (кривые 2, 3 рис. 3). В этот промежуток времени периферийные области объема содержат относительно малое число излучающих состояний атома и слабо подсвечивают центральную возбужденную часть сосуда с газом. В результате в приосевой части цилиндрической кюветы происходит общий быстрый распад заселенности резонансных уровней (кривая 1 рис. 4) при сравнительно медленном изменении формы $n^*(x, t) \approx n_0^*(x)$. Подобная картина распада позволяет сделать одно интересное заключение. Начальный участок временного изменения общего содержания возбужденных частиц $N^*(t) = \int_V d^3x n^*(x, t)$ описывается одноэкспоненциальным членом. Действительно, если проинтегрировать обе части уравнения (1) по (x), то

$$\frac{dN^*}{dt} = -(A_1 + W) N^*(t) + N^*(t) \left[\frac{\int_V d^3x A_{\text{эфф}}(x) n^*(x, t)}{\int_V d^3x n^*(x, t)} \right]. \quad (14)$$

Пока $n^*(x, t) \approx n_0^*(x)$ (кривые 2, 3 рис. 3) величина $\gamma_{\text{эфф}}(n_0^*)$, стоящая в квадратных скобках уравнения (14), неизменна во времени и, согласно (14), служит константой распада $N^*(t)$: $N^*(t) \approx N_0^* \exp[-(A_1 + W + \gamma_{\text{эфф}})t]$. По своему смыслу $\gamma_{\text{эфф}}$ дает общее число фотонов, уходящих в единицу времени из объема, в расчете на один излучающий атом. Запись $\gamma_{\text{эфф}}(n_0^*)$ подразумевает функциональную зависимость $\gamma_{\text{эфф}}$ от пространственного профиля $n_0^*(x)$.

Сплошная кривая 2 (рис. 4) изображает затухание $N^*(t)$ для начального распределения (1) (рис. 3) в цилиндрической кювете. В согласии со сделанными выше выводами ее начальный участок линеен. Кривая 3' (рис. 4) соответствует одноэкспоненциальному распаду с константой $\gamma_{\text{эфф}}(n_0^*)$, рассчитанной для распределения (1) (рис. 3). Для сравнения приведен распад фундаментальной моды, представленной кривой 3 (рис. 4).

На первый взгляд, если отвлечься от сделанного выше анализа, наличие левого линейного участка кривой 2 в экспериментальной ситуации можно отнести

за счет каскадного заселения резонансного уровня с вышележащего возбужденного терма. Однако в разбираемом здесь случае оба линейных участка обусловлены явлением пленения излучения. Таким образом, в области средних опти-

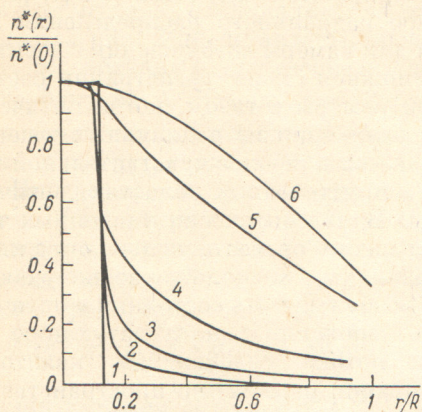


Рис. 3. Процесс релаксации начального ступенчатого распределения (1) к фундаментальной моде (6).

Расчет выполнен на ЭВМ по методике [3] для случая цилиндра бесконечной высоты. Начальное распределение (1) считается однородным по цилиндрической координате z . Контур линии допллеровский, значение оптической плотности $\tau_0 = k_0 R = 2$; $A_1 + W = 0$; $1 - t = 0$; $2 - t = 1.25 A_0^{-1}$; $3 - t = 2.5 A_0^{-1}$; $4 - t = 4.75 A_0^{-1}$; $5 - t = 9.5 A_0^{-1}$; $6 - t = 15.8 A_0^{-1}$; $\Gamma_{эфф}^{(H)} = 3.2 A_0^{-1}$.

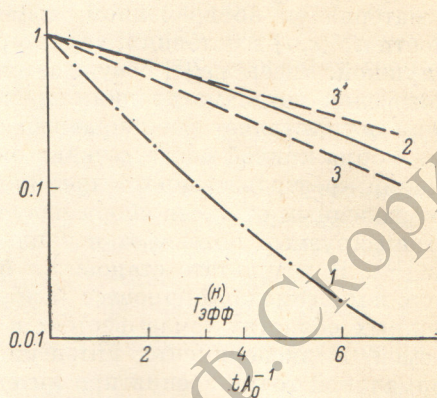


Рис. 4. Относительный спад во времени выходящего из объема газа суммарного потока излучения.

Кривая 1 соответствует значению заселенности на оси цилиндрической кюветы.

ческих толщин необходимо проявлять аккуратность при интерпретации сложной кривой распада. При этом может оказаться полезным факт зависимости наклона начального линейного участка от условий возбуждения в электронной пушке, в частности, от ширины радиального профиля электронного пучка. Время распада фундаментальной моды при условии сохранения геометрии объема газа и давления в кювете подобным свойством не обладает.

Литература

- [1] T. Holstein. Phys. Rev., 72, 1212, 1947; 83, 1159, 1951.
- [2] Л. М. Биберман. ЖЭТФ, 17, 416, 1947.
- [3] Б. Н. Безуглов. Опт. и спектр., 43, 418, 1977.
- [4] В. В. Иванов. Перенос излучения и спектры небесных тел. М., 1969.
- [5] П. П. Забрейко. Интегральные уравнения. М., 1968.
- [6] А. С. Андреев. В сб.: Исследование по теории функций многих вещественных переменных. Ярославль, 1978.
- [7] Л. Д. Ландау, Е. М. Лившиц. Квантовая механика. М., 1974.
- [8] А. М. Дыхне, А. П. Напартович. Препринт ИАЭ—2026, М., 1970.
- [9] И. С. Градштейн, И. М. Рыжик. Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений. М., 1963.
- [10] В. А. Векленко. ЖЭТФ, 36, 204, 1959.
- [11] Л. М. Биберман. Тр. XX Междуна. конгресса по теор. и прикл. хим., М., 1965.
- [12] В. И. Коган, В. А. Абрамов, А. П. Васильев. J. Quant. Spectr. Rad. Tr., 8, 1833, 1968.
- [13] Н. Н. Безуглов, Ю. Б. Голубовский. Опт. и спектр., 52, вып. 4, 1982.

Поступило в Редакцию 4 октября 1980 г.