

УДК 539.186.3

ВЫСТРАИВАНИЕ КОМПОНЕНТ МУЛЬТИПЛЕТОВ АТОМНЫХ УРОВНЕЙ ПРИ СТОЛКНОВЕНИЯХ

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

С помощью теории групп показывается, что анизотропная столкновительная релаксация атомных состояний в газах может привести к порождению выстраивания. Для реализации этой возможности оказывается необходимым столкновительное смешивание атомных состояний. Произведены расчеты выстраивания подуровней тонкого или сверхтонкого дублета исследуемого атома при столкновениях с пучком нейтральных атомов инертных газов. Теория проиллюстрирована на примере 2P -дублета лития и сверхтонкого дублета $F=1/2, 3/2$ для 1P_1 -состояния ртути.

1. Введение

Ранее была развита теория анизотропной релаксации атомных состояний в газах при столкновениях с пучком нейтральных или заряженных частиц и выявлены интересные особенности спектроскопических проявлений такой релаксации в деполяризации [1, 2], а также в уширении и сдвиге [3-5] спектральных линий. Здесь мы рассматриваем новый аспект анизотропной релаксации — возникновение выстраивания компонент атомных уровней при столкновениях в пучках, выясним необходимые условия реализации этого эффекта и произведем количественные расчеты выстраивания для случая столкновений атомов с нейтральными частицами.

В условиях анизотропных столкновений относительные скорости сталкивающихся частиц характеризуются некоторым преимущественным направлением, которое примем за ось z ; распределение относительных скоростей сохраняется неизменным при вращениях вокруг оси z и при отражениях в плоскостях, проходящих через эту ось. Поэтому суммарное влияние столкновений на матрицу плотности σ ансамбля изучаемых атомов характеризуется группой симметрии $C_{\infty v}$.

Выделим некоторый мультиплет тонкой структуры с заданными значениями L и S . Состояния, принадлежащие к этому мультиплету, обозначим через $|JM\rangle$ и введем поляризационные моменты матрицы плотности [6]

$$\rho_Q^K(JJ') = \sum_{MM'} (-1)^{J'-M'} \begin{bmatrix} J & J' & K \\ M & -M' & Q \end{bmatrix} \sigma_{MM'}^{JJ'} \quad (1)$$

Из свойств группы $C_{\infty v}$ следует [7], что анизотропная релаксация завязывает между собой поляризационные моменты ρ_Q^K с одинаковыми проекциями Q , но с различными рангами K . В этом заключается существенная особенность анизотропной столкновительной релаксации в пучках по сравнению с изотропной релаксацией в объеме газа, где скорости распределены хаотически, и сохраняется не только проекция Q , но и ранг K поляризационных моментов ρ_Q^K . Когда $Q=0$, то под действием анизотропных столкновений завязываются между собой величины вида ρ_0^K , у которых ранги K имеют одинаковую четность.

Из сказанного следует, что величины вида ρ_0^0 и ρ_0^2 релаксируют в условиях анизотропных столкновений совместно и могут переходить друг в друга по схеме

$\rho_0^0(JJ) \leftrightarrow \rho_0^0(J_1J_1)$, где J_1 необязательно совпадает с J . Так как величина $n_J = \sqrt{2J+1} \rho_0^0(JJ)$ есть заселенность состояния J , а величина

$$\frac{1}{2} \langle 3J_z^2 - J^2 \rangle |_{J=J_1} = \{5/[4J_1(J_1+1)(4J_1^2-1)(2J_1+3)]\}^{-1/2} \rho_0^0(J_1J_1)$$

представляет собой zz -компоненту выстраивания атомов в состоянии J_1 , то из приведенных здесь соображений симметрии следует возможность порождения выстраивания из заселенности. Физическая картина этого явления ясна: она соответствует упорядочению электронных квадрупольных моментов атомов относительно оси пучка налетающих частиц.

2. Необходимое условие порождения выстраивания из заселенности

Установим теперь условие, необходимое для реализации отмеченной выше возможности порождения выстраивания из заселенности при анизотропных столкновениях.

Пусть столкновения не выводят атомы из группы состояний $|JM\rangle$, принадлежащих к одному спектральному LS -мультиплету. Это условие, как правило, хорошо выполняется при столкновениях с тепловой энергией. Вклад столкновений в изменение поляризационных моментов ансамбля атомов во времени описывается уравнениями

$$\dot{\rho}_Q^K(JJ') = \sum_{K_1J_1J_1'} R_Q^{KK_1}(JJ'; J_1J_1') \rho_{Q_1}^{K_1}(J_1J_1'), \quad (2)$$

где $R_Q^{KK_1}(JJ'; J_1J_1')$ — элементы матрицы анизотропной столкновительной релаксации. Эта матрица диагональна по Q , а при $Q=0$ ее элементы, у которых индексы K и K_1 имеют разные четности, равны нулю. Сумма в (2) берется по K_1 и по всем J_1 и J_1' , принадлежащим к рассматриваемому мультиплету.

В силу сказанного выше суммарная заселенность n уровней мультиплета под действием столкновений не изменяется. Поскольку $n = \sum_J \sqrt{2J+1} \rho_0^0(JJ)$, то этот факт с учетом уравнений (2) записывается в виде соотношения

$$\dot{n} = \sum_{K_1J_1J_1'} \sqrt{2J+1} R_0^{0K_1}(JJ; J_1J_1') \rho_{0_1}^{K_1}(J_1J_1') = 0. \quad (3)$$

Так как мгновенные значения поляризационных моментов $\rho_0^{K_1}(J_1J_1')$ могут быть произвольными, а условие (3) выполняется во все моменты времени, то коэффициент при любом из поляризационных моментов в правой части (3) равняется нулю

$$\sum_J \sqrt{2J+1} R_0^{0K_1}(JJ; J_1J_1') = 0. \quad (4)$$

Это равенство, выполняющееся при всех J_1 и J_1' , представляет собой универсальное ограничение на элементы R -матрицы.

Если мультиплет содержит только один уровень J , то из (4) следует: $R_0^{0K_1}(JJ; JJ) = 0$, а с учетом свойств симметрии R -матрицы получим также: $R_0^{K_1,0}(JJ; JJ) = 0$ при всех K_1 . Это означает, что в случае изолированного уровня J , не перемешиваемого столкновениями с другими уровнями $J_1 \neq J$, переход заселенности в выстраивание ρ_0^2 (или в высшие поляризационные моменты вида ρ_0^K с $K=4, 6$ и т. д.) принципиально невозможен. Поэтому необходимым условием возникновения выстраивания из заселенности под действием анизотропных столкновений является внутримultipлетное смешивание (или смешивание данного изолированного уровня J с уровнями J_1 , принадлежащими к другим спектральным мультиплетам). Этот вывод носит совершенно общий характер; он справедлив для всех типов взаимодействия исследуемых атомов с пучком налетающих частиц (нейтральных атомов или молекул, ионов, электронов), а также в случае возникновения выстраивания под действием дрейфового движения частиц в плазме. В случае, когда столкновения сохраняют значение J

(это справедливо для достаточно широких мультиплетов тонкой структуры), наши выводы остаются в силе для мультиплетов сверхтонкой структуры. При этом приводимые здесь и в дальнейшем формулы могут применяться и к мультиплетам сверхтонкой структуры: для этого достаточно заменить моменты количества движения по схеме: $L \rightarrow J$, $J \rightarrow F$, $S \rightarrow I$, где I — ядерный спин.

3. Внутримультиметное смешивание при анизотропных столкновениях

Обратимся к задаче о внутримультиметном смешивании. Она проще всего решается для узких мультиплетов тонкой структуры [9], в которых связь между спиновым моментом S и орбитальным моментом L во время столкновения разрывается, а в результате столкновения изменяется ориентация момента L , но сохраняется ориентация спина S .

Построив поляризационные моменты матрицы плотности в LM_L -представлении

$$\rho_q^z(LL) = \sum_{M_L M_L'} (-1)^{L-M_L'} \begin{bmatrix} L & L & 1 \\ M & -M_L & q \end{bmatrix} \rho_{M_L M_L'}^{LL} \quad (5)$$

и введя соответствующую им матрицу анизотропной столкновительной релаксации $R_q^{xx_1}(L)$, имеем

$$\dot{\rho}_q^z(LL) = \sum_{x_1} R_q^{xx_1}(L) \overline{\rho}_q^{x_1}(LL). \quad (6)$$

Учитывая далее сложение моментов L и S и используя аппарат теории момента количества движения [8], найдем следующий закон изменения поляризационных моментов в JM -представлении под действием анизотропных столкновений

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_Q^K(JJ') = & \sum_{K_1 J_1 J_1'} \rho_Q^{K_1}(J_1 J_1') \sum_{\substack{x_1 \\ l p q}} (-1)^{J'+J_1'-J-J_1'+K+K_1-l-p+Q+q} \times \\ & \times (2l+1) \sqrt{(2x+1)(2x_1+1)(2K+1)(2K_1+1)(2J+1)(2J'+1)(2J_1+1)(2J_1'+1)} \times \\ & \times \begin{Bmatrix} S & S & l \\ L & L & z \\ J & J' & K \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} S & S & l \\ L & L & z_1 \\ J_1 & J_1' & K_1 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} x_1 & x & p \\ K & K_1 & l \end{Bmatrix} \begin{bmatrix} x_1 & z & p \\ q & -q & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} K_1 & K & p \\ Q & -Q & 0 \end{bmatrix} R_q^{xx_1}(L). \quad (7) \end{aligned}$$

Фигурные скобки обозначают соответственно $9j$ - и $6j$ -символы, а квадратные скобки — коэффициенты Клебша—Гордана. Сравнение с (2) показывает, что внутренняя сумма в правой части формулы (7) представляет собой элемент матрицы анизотропной столкновительной релаксации $R_Q^{K K_1}(JJ'; J_1 J_1')$. Так как нас здесь интересует превращение заселенности на определенных уровнях тонкой структуры в выстраивание, а также совместная релаксация заселенности и выстраивания, то в дальнейшем будем рассматривать случай, когда $Q=0$, K и K_1 — четные числа, а $J^1=J$ и $J_1^1=J_1$.

4. Расчеты выстраивания компонент дублетов тонкой и сверхтонкой структуры

Простейшая ситуация, допускающая внутримультиметное смешивание и порождение выстраивания из заселенности, реализуется, когда мультиплет состоит из двух уровней. Поэтому положим $S=1/2$, $L=1$ и рассмотрим узкий мультиплет 2P , имеющий два уровня: ${}^2P_{1/2}$ и ${}^2P_{3/2}$.

Пусть уровень ${}^2P_{1/2}$ заселяется стационарной подкачкой N . Тогда перенос заселенности с уровня ${}^2P_{1/2}$ на уровень ${}^2P_{3/2}$, а также возникновение и разрушение выстраивания на уровне ${}^2P_{3/2}$, описываются совместной релаксацией величин $\rho_0^0\left(\frac{1}{2} \frac{1}{2}\right)$, $\rho_0^0\left(\frac{3}{2} \frac{3}{2}\right)$ и $\rho_0^2\left(\frac{3}{2} \frac{3}{2}\right)$. В стационарном режиме значения этих величин определяются из системы трех алгебраических уравнений

$$\left. \begin{aligned}
 & \left[-\Gamma_0 + R_0^{00} \left(\frac{1}{2} \frac{1}{2}; \frac{1}{2} \frac{1}{2} \right) \right] \rho_0^0 \left(\frac{1}{2} \frac{1}{2} \right) + R_0^{00} \left(\frac{1}{2} \frac{1}{2}; \frac{3}{2} \frac{3}{2} \right) \rho_0^0 \left(\frac{3}{2} \frac{3}{2} \right) + \\
 & + R_0^{02} \left(\frac{1}{2} \frac{1}{2}; \frac{3}{2} \frac{3}{2} \right) \rho_0^0 \left(\frac{3}{2} \frac{3}{2} \right) + \frac{N}{\sqrt{2}} = 0, \\
 & \left[-\Gamma_0 + R_0^{00} \left(\frac{3}{2} \frac{3}{2}; \frac{3}{2} \frac{3}{2} \right) \right] \rho_0^0 \left(\frac{3}{2} \frac{3}{2} \right) + R_0^{00} \left(\frac{3}{2} \frac{3}{2}; \frac{1}{2} \frac{1}{2} \right) \rho_0^0 \left(\frac{1}{2} \frac{1}{2} \right) + \\
 & + R_0^{02} \left(\frac{3}{2} \frac{3}{2}; \frac{3}{2} \frac{3}{2} \right) \rho_0^0 \left(\frac{3}{2} \frac{3}{2} \right) = 0, \\
 & \left[-\Gamma_0 + R_0^{22} \left(\frac{3}{2} \frac{3}{2}; \frac{3}{2} \frac{3}{2} \right) \right] \rho_0^0 \left(\frac{3}{2} \frac{3}{2} \right) + R_0^{20} \left(\frac{3}{2} \frac{3}{2}; \frac{1}{2} \frac{1}{2} \right) \rho_0^0 \left(\frac{1}{2} \frac{1}{2} \right) + \\
 & + R_0^{20} \left(\frac{3}{2} \frac{3}{2}; \frac{3}{2} \frac{3}{2} \right) \rho_0^0 \left(\frac{3}{2} \frac{3}{2} \right) = 0.
 \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

Через Γ_0 обозначено радиационное затухание электронного состояния 2P . Входящие в (8) элементы матрицы $R_0^{KK_1}(JJ; J_1J_1)$ были вычислены в соответствии с формулой (7), причем использовались численные значения элементов матрицы анизотропной столкновительной релаксации электронного момента $L=1$ $R_q^{xx_1}$, рассчитанные в работах [1, 2].

Результаты расчетов интересующих нас величин $\rho_0^0 \left(\frac{1}{2} \frac{1}{2} \right)$, $\rho_0^0 \left(\frac{3}{2} \frac{3}{2} \right)$ и $\rho_0^2 \left(\frac{3}{2} \frac{3}{2} \right)$ в стационарном режиме для случая столкновений исследуемых атомов с пучком нейтральных частиц изображены на рис. 1. По оси абсцисс отложена безразмерная величина

$$u = n_B v^{3/5} \left| \frac{C_{\parallel} - C_{\perp}}{\hbar} \right|^{2/5} / \Gamma_0, \quad (9)$$

где n_B — числовая плотность нейтральных атомов инертного газа В в пучке, v — относительная скорость атомов В и исследуемого атома А, $C_{\parallel}$ и $C_{\perp}$ — значения постоянной дисперсионного взаимодействия А...В, соответствующие случаям, когда проекция электронного момента $L=1$ атома А на ось пучка равна соответственно $M_L=1$ или $M_L=0$.

По оси ординат на рис. 1 отложены стационарные значения заселенностей n_J , где $J=1/2$ или $3/2$, и выстраивания $\frac{1}{2} \langle 3J_z^2 - J^2 \rangle$ ($J=3/2$) в безразмерных единицах u . Из рис. 1 видно, что с ростом параметра u , характеризующего воздействие пучка атомов инертного газа В на состояние исследуемого атома, происходит перенос заселенности с уровня ${}^2P_{1/2}$ на уровень ${}^2P_{3/2}$. Одновременно на уровне ${}^2P_{3/2}$ появляется выстраивание $\frac{1}{2} \langle 3J_z^2 - J^2 \rangle$, которое достигает максимума вблизи точки $u=0.47$, а затем с ростом u убывает. Это обусловлено конкуренцией двух процессов: порождения выстраивания из заселенности $n_{1/2}$ и его разрушения («деполяризации») под действием анизотропных столкновений. Первый процесс преобладает при малых, а второй — при больших значениях параметра u .

Максимуму на графике $\frac{1}{2} \langle 3J_z^2 - J^2 \rangle$ соответствует максимальная величина сигнала выстраивания $(I_x - I_z)_y$, где I_x и I_z — интенсивности излучаемого с уровня ${}^2P_{3/2}$ света, линейно поляризованного по осям x и z , при наблюдении вдоль оси y . Степень линейной поляризации света, излучаемого с уровня ${}^2P_{3/2}$, равна

$$\frac{(I_x - I_z)_y}{(I_x + I_z)_y} = \frac{3\rho_0^2}{4\rho_0^0 - \rho_0^2} = \frac{3 \langle 3J_z^2 - J^2 \rangle}{12n_{3/2} - \langle 3J_z^2 - J^2 \rangle}. \quad (10)$$

Как видно из рис. 2, эта степень поляризации монотонно убывает с ростом параметра u , составляя $\sim 58\%$ при очень малых u , 25% при $u=0.47$ (когда сигнал выстраивания максимален) и монотонно стремится к нулю при дальнейшем росте параметра.

Изображенные на рис. 1 и 2 зависимости носят общий характер, описывая порождение выстраивания не только для узких 2P -дублетов тонкой структуры, но и для дублетов сверхтонкой структуры с $J=1$, $I=1/2$ (см. замечание в конце

раздела 2). В последнем случае под $C_{\parallel}$ и $C_{\perp}$ следует понимать дисперсионные постоянные для электронного состояния с $J=1$ соответственно при $M_J=1$ и $M_J=0$.

Индивидуальные особенности сталкивающихся атомов входят в параметр u (9) только через анизотропию дисперсионных постоянных $C_{\parallel} - C_{\perp}$. В остальном этот параметр зависит от конкретных условий эксперимента: от плотности атомов В в пучке и от скорости соударений v .

На рис. 3 представлена зависимость выстраивания на уровне $^2P_{3/2}$ атома Li и на уровне сверхтонкой структуры $F=3/2$ состояния 1P_1 ^{199}Hg от плотности n_B пучка для различных инертных газов. Величины $C_{\parallel}$ и $C_{\perp}$ вычислялись методом, предложенным в работах [10, 11]. Скорости мы приняли равными средним тепловым при 556 К в случае лития или 300 К в случае ртути. Из рис. 3 видно,

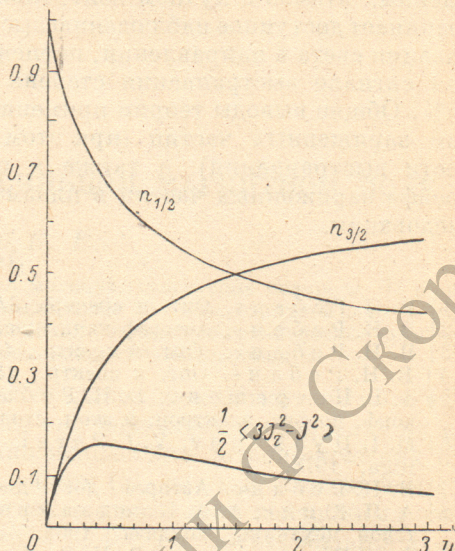


Рис. 1. Зависимость выстраивания и заселенностей компонент дублета $^2P_{3/2, 1/2}$ от параметра u .

что выстраивание возникает, достигает максимума и исчезает с ростом плотности пучка тем быстрее, чем больше атомный вес инертного газа В (и вместе с ним, его поляризуемость и постоянные дисперсионного взаимодействия). Поэтому для каждой пары атомов А, В существует свой оптимальный режим, соответствующий определенным сочетаниям плотности и скорости пучка, при котором анизотропные столкновения наводят максимальное выстраивание.

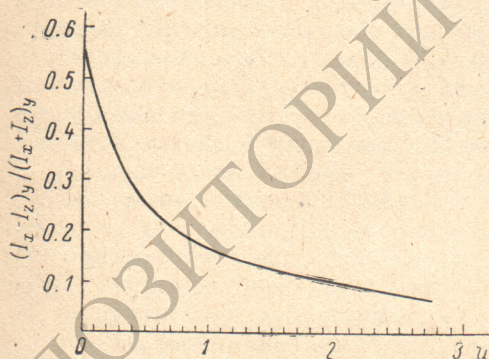


Рис. 2. Зависимость степени линейной поляризации света, излучаемого с уровня $^2P_{3/2}$, от параметра u .

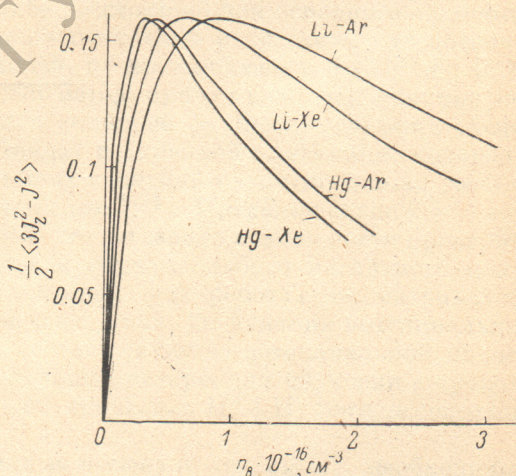


Рис. 3. Зависимость выстраивания на $^2P_{3/2}$ -уровне Li и на уровне $F=3/2$ 1P_1 -состояния Hg^{199} от плотности пучка инертного газа.

Заметим теперь, что анизотропная столкновительная релаксация атомных состояний может быть реализована не только методом пучков, но и селекцией атомов по скоростям посредством их возбуждения одной лазерной модой на крыле доплеровского контура. Этим методом в работе [12] был измерен сигнал выстраивания $^2P_{3/2}$ -состояния атомов натрия в ксеноне при лазерном возбуждении их $^2P_{1/2}$ -состояния. Приближенная теория [13], примененная в этой ра-

боте, привела однако к неверному знаку выстраивания и линейной поляризации. Из рис. 2 видно, что наша теория предсказывает преимущественную линейную поляризацию света в направлении, перпендикулярном к лазерному лучу. Это полностью согласуется с опытом [12].

Произведенные здесь расчеты показывают, что при столкновениях возбужденных атомов с пучком нейтральных частиц даже при тепловых энергиях возникает доступное наблюдению выстраивание и преобладание линейной поляризации света в направлении, перпендикулярном к оси пучка. При максимальном сигнале выстраивания степень линейной поляризации составляет около 25%. Общие выводы теории применимы и к случаю столкновений атомов с пучком заряженных частиц (при этом можно ожидать более высокой эффективности выстраивания), а также к порождению выстраивания под влиянием дрейфа заряженных частиц в плазме. Эти проблемы требуют дальнейшего исследования.

Литература

- [1] В. Н. Ребане. Опт. и спектр., 24, 309, 1968.
- [2] В. Н. Ребане. Автореф. канд. дис. ЛГУ, 1969.
- [3] В. Н. Ребане. Опт. и спектр., 43, 201, 1977.
- [4] В. Н. Ребане. Опт. и спектр., 43, 815, 1977.
- [5] А. Г. Петрашень, В. Н. Ребане, Т. К. Ребане. Тез. докл. VIII Всесоюз. конф. по физ. электрон. и атом. столкновений, 12. Л., 1981.
- [6] M. I. Dyakonov, V. I. Perel. Proc. VI Internat. conf. on atomic physics, 410, Riga, 1978.
- [7] В. Н. Ребане. Автореф. докт. дис. ЛГУ, 1980.
- [8] А. П. Юцис, А. А. Бандзайтис. Теория момента количества движения в квантовой механике. Вильнюс, 1965.
- [9] А. Г. Петрашень, В. Н. Ребане, Т. К. Ребане. Опт. и спектр., 51, 237, 1981.
- [10] А. Г. Петрашень, Т. К. Ребане. Опт. и спектр., 44, 851, 1978.
- [11] G. D. Mahan. J. Chem. Phys., 50, 2755, 1969.
- [12] M. Elbel, H. Hühnermann, Th. Meier, W. R. Schneider. Z. Phys., A275, 339, 1975.
- [13] M. Elbel. Z. Phys., A248, 375, 1974.

Поступило в Редакцию 7 января 1982 г.