

УДК 539.184.26

КИНЕТИЧЕСКИЕ УРАВНЕНИЯ
ДЛЯ ОПТИЧЕСКОЙ НАКАЧКИ АТОМОВ
ЩЕЛОЧНЫХ МЕТАЛЛОВ
ПРИ БОЛЬШОЙ СВЕРХТОНКОЙ СТРУКТУРЕ
ВОЗБУЖДЕННЫХ СОСТОЯНИЙ

Е. И. Дащевская

Выведены кинетические уравнения для заселенностей зеемановских состояний сверхтонкой структуры при оптической накачке атомов щелочных металлов широкими линиями D_1 или D_2 . В условиях слабой накачки (ориентация заметно меньше максимально достижимой) получены уравнения для средних значений z -проекций угловых моментов в основном ($^2S_{1/2}$) и возбужденных ($^2P_{1/2}$ и $^2P_{3/2}$) состояниях. Полученные уравнения справедливы в предположении большой сверхтонкой структуры первых возбужденных состояний, т. е. при выполнении условий $\Omega^* \tau > 1$; $\chi_{ij} < \Omega^*$.

В последнее время метод оптической накачки все шире используется для исследования релаксационных процессов при атомных столкновениях [1–5]. Для извлечения такой информации из данных по кинетике поляризации состояний накачиваемых атомов или по форме сигнала накачки в стационарных условиях необходимо располагать теоретическим описанием цикла накачки с учетом реальных механизмов релаксации. Под этим мы понимаем механизмы, основанные на определенных предположениях о межатомном взаимодействии, а не постулируемые в виде задания определенной структуры релаксационной матрицы (например, так называемая *униформная релаксация* или *механизм сильных столкновений* [6, 7]).

Такой подход был недавно осуществлен для описания оптической накачки атомов щелочных металлов линией D_1 [8]. При этом авторы ограничились условием слабой накачки (скорость накачки существенно меньше скорости релаксации в основном состоянии), что позволило построить систему кинетических уравнений, в одно из которых среднее значение проекции спина $\langle S_z \rangle$ входит явно. Однако экспериментальные измерения поляризации удобнее проводить при не слишком малых значениях $\langle S_z \rangle$. Это ставит задачу об описании накачки при произвольных значениях $\langle S_z \rangle$, т. е. о решении уравнений для атомной матрицы плотности.

В настоящей работе выведены кинетические уравнения для цикла накачки щелочных металлов линиями D_1 или D_2 с произвольной поляризацией и общим механизмом релаксации. В общем виде получены также уравнения для компонент угловых моментов при слабой накачке.

Микроскопические кинетические уравнения

Будем считать, что накачка производится широкой линией [ширина линии больше сверхтонкой структуры (СТС) возбужденного состояния] и выполняются условия, когда эволюцию заселенностей можно рассматривать независимо от эволюции когерентностей (изотропная релаксация, частоты СТС в основном и возбужденном состояниях больше обратных времен релаксации, частоты СТС в возбужденном состоянии значительно

превышают скорость спонтанного высвечивания). Тогда кинетические уравнения для заселенности строятся на основе балансной схемы.

Ось квантования угловых моментов (ось z) считается совпадающей с направлением распространения света, квантовые числа F , m и \mathcal{F} , μ фиксируют состояния сверхтонкой структуры в основном и возбужденном состояниях, заселенности обозначаются как n_{Fm} (нижнее состояние $^2S_{1/2}$) и $N_{\mathcal{F}\mu}^j$ (верхнее состояние 2P_j , $j=1/2$ или $3/2$). Полная скорость изменения заселенности определенного состояния складывается из скорости изменения под действием света, спонтанного высвечивания и скорости релаксации при столкновениях.

В соответствии с этим

$$\begin{aligned} \dot{n}_{Fm} &= (\dot{n}_{Fm})_{\text{опт.}} + (\dot{n}_{Fm})_{\text{рел.}}, \\ \dot{N}_{\mathcal{F}\mu}^j &= (\dot{N}_{\mathcal{F}\mu}^j)_{\text{опт.}} + (\dot{N}_{\mathcal{F}\mu}^j)_{\text{рел.}}, \end{aligned} \quad (1)$$

где смысл индексов опт. и рел. очевиден.

При условии, что индуцированным излучением можно пренебречь по сравнению со спонтанным, полная заселенность N верхнего состояния мала. Поэтому

$$n = \sum_{Fm} n_{Fm} = 1, \quad N^j = \sum_{\mathcal{F}\mu} N_{\mathcal{F}\mu}^j \ll 1. \quad (2)$$

Пусть $P_{Fm}^{\mathcal{F}\mu}(q, j)$ обозначает относительную вероятность перехода между состояниями Fm и $\mathcal{F}\mu$ под действием света поляризации q ($q=-1.0$ и 1 для света σ^+ , π и σ^-), нормированную так, чтобы полная вероятность спонтанного перехода с уровня \mathcal{F} , μ с излучением фотонов всех поляризаций равнялась единице

$$\sum_{Fmq} P_{Fm}^{\mathcal{F}\mu}(q, j) = 1. \quad (3)$$

Вероятность оптического перехода $P_{Fm}^{\mathcal{F}\mu}(q, j)$, рассчитанная по правилам сложения моментов ($s+1 \rightarrow j$, $j+I \rightarrow F$) и удовлетворяющая (3), равна [9]

$$P_{Fm}^{\mathcal{F}\mu}(q, j) = (2j+1)(2F+1)(2\mathcal{F}+1) \begin{Bmatrix} 1/2 & F & I \\ \mathcal{F} & j & 1 \end{Bmatrix}^2 \begin{pmatrix} F & 1 & \mathcal{F} \\ -m & q & \mu \end{pmatrix}^2 \equiv b_F^{\mathcal{F}, j} \begin{pmatrix} F & 1 & \mathcal{F} \\ -m & q & \mu \end{pmatrix}^2, \quad (4)$$

где $\begin{Bmatrix} \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \end{Bmatrix}$ и $\begin{pmatrix} \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \end{pmatrix}$ $6j$ - и $3j$ -символы.

Уравнения поглощения и высвечивания имеют вид

$$(\dot{n}_{Fm})_{\text{опт.}} = -A \left[\sum_{\mathcal{F}\mu} P_{Fm}^{\mathcal{F}\mu}(q, j) \right] n_{Fm} + \frac{1}{\tau} \left[\sum_{\mathcal{F}\mu q'} P_{Fm}^{\mathcal{F}\mu}(q' j) N_{\mathcal{F}\mu}^{j'}, \right], \quad (5a)$$

$$(\dot{N}_{\mathcal{F}\mu}^j)_{\text{опт.}} = A \sum_{Fm} P_{Fm}^{\mathcal{F}\mu}(q, j) n_{Fm} - \frac{1}{\tau} N_{\mathcal{F}\mu}^j. \quad (5b)$$

Здесь τ — время жизни возбужденного состояния, а параметр A выражается через полную скорость возбуждения неполяризованных атомов W или полную концентрацию возбужденных атомов N

$$\begin{aligned} W &= A \sum_{\substack{\mathcal{F}\mu \\ Fm}} \dot{P}_{Fm}^{\mathcal{F}\mu}(q, j) \cdot \frac{1}{2(2I+1)} = \frac{A}{6(2I+1)} \sum_{F, \mathcal{F}} b_F^{\mathcal{F}}(j) = \frac{A}{6} (2j+1), \\ N &= \frac{A\tau}{6} (2j+1). \end{aligned} \quad (6)$$

Таким образом, A может быть легко выражено через силу осциллятора резонансного перехода атома щелочного металла.

Перейдем к описанию релаксации. Будем считать вначале, что релаксация происходит при бинарных столкновениях атома щелочного металла

с атомами инертного газа. Если пренебречь переходами между компонентами тонкой структуры возбужденного состояния 2P , то уравнения для n_{Fm} и $N_{\mathcal{F}\mu}^j$ имеют вид

$$(\dot{n}_{Fm})_{\text{рел.}} = - \sum_{F'm'} \gamma_{FmF'm'} n_{F'm'}, \quad (7a)$$

$$(\dot{N}_{\mathcal{F}\mu}^j)_{\text{рел.}} = - \sum_{\mathcal{F}'\mu'} \Gamma_{\mathcal{F}\mu\mathcal{F}'\mu'}^j N_{\mathcal{F}'\mu'}^j. \quad (7b)$$

Известно, что вследствие малого времени столкновения τ_0 по сравнению с периодами сверхтонких переходов в основном $1/\Omega$ и возбужденном $1/\Omega^*$ состоянии релаксационные коэффициенты $\gamma_{FmF'm'}$ и $\Gamma_{\mathcal{F}\mu\mathcal{F}'\mu'}$, выражаются через небольшое число параметров, характеризующих релаксацию атома с нулевым ядерным спином [10]. Такими параметрами в рассматриваемом случае являются: скорость затухания ориентации $\gamma_1(^2S_{1/2})$ в основном состоянии, скорость затухания ориентации $\gamma_1(^2P_{1/2})$ в нижнем состоянии резонансного дублета и скорости затухания ориентации $\gamma_1(^2P_{3/2})$, выстраивания $\gamma_2(^2P_{3/2})$ и октупольного момента $\gamma_3(^2P_{3/2})$ в верхнем состоянии дублета. Эти константы, обозначаемые ниже для краткости как γ , Γ и Γ_1 , Γ_2 , Γ_3 определяют «неприводимые» константы релаксации $\gamma_x^{FF'}$, $\Gamma_x^{\mathcal{F}\mathcal{F}'}(1/2)$ и $\Gamma_x^{\mathcal{F}\mathcal{F}'}(3/2)$ [11]

$$\gamma_x^{FF'} = \begin{bmatrix} 1 & I & I & z \\ 1/2 & 1/2 & F' & F \\ 1/2 & F' & 1/2 & F \end{bmatrix} 3 (-1)^{F-F'} (2F+1)(2F'+1) \gamma, \quad (8a)$$

$$\Gamma_x^{\mathcal{F}\mathcal{F}'}(1/2) = \begin{bmatrix} 1 & I & I & z \\ 1/2 & 1/2 & \mathcal{F}' & \mathcal{F} \\ 1/2 & \mathcal{F}' & 1/2 & \mathcal{F} \end{bmatrix} 3 (-1)^{\mathcal{F}-\mathcal{F}'} (2\mathcal{F}+1)(2\mathcal{F}'+1) \Gamma, \quad (8b)$$

$$\Gamma_x^{\mathcal{F}\mathcal{F}'}(3/2) = \sum_k \begin{bmatrix} k & I & I & z \\ 3/2 & 3/2 & \mathcal{F}' & \mathcal{F} \\ 3/2 & \mathcal{F}' & 3/2 & \mathcal{F} \end{bmatrix} (-1)^{\mathcal{F}-\mathcal{F}'} (2k+1)(2\mathcal{F}+1)(2\mathcal{F}'+1) \Gamma_k. \quad (8c)$$

В свою очередь «неприводимые» константы определяют кинетические коэффициенты $\gamma_{FmF'm'}$ и $\Gamma_{\mathcal{F}\mu\mathcal{F}'\mu'}$

$$\gamma_{FmF'm'} = (-1)^{m-m'} \sum_{z=1}^{\min(2F, 2F')} \binom{2z}{m-m} \binom{F & F & z}{m & -m & 0} \binom{F' & F' & z}{m' & -m' & 0} \gamma_x^{FF'}, \quad (9a)$$

$$\Gamma_{\mathcal{F}\mu\mathcal{F}'\mu'}(j) = (-1)^{\mu-\mu'} \sum_{z=1}^{\min(2\mathcal{F}, 2\mathcal{F}')} \binom{2z}{\mu-\mu} \binom{\mathcal{F} & \mathcal{F} & z}{\mu & -\mu & 0} \binom{\mathcal{F}' & \mathcal{F}' & z}{\mu' & -\mu' & 0} \Gamma_x^{\mathcal{F}\mathcal{F}'}(j). \quad (9b)$$

Теперь можно учесть, что с релаксацией основного состояния при столкновениях может конкурировать также и релаксация на стенке [12]. Формально уравнения (7) с учетом (8) и (9) остаются справедливыми при замене γ на γ^* , если время корреляции τ_c случайного магнитного поля, действующего на адсорбированный атом, мало в смысле выполнения условия $\Omega \tau_c \ll 1$ [аналог условия $\Omega \tau_0 \ll 1$ и $\Omega^* \tau_0 \ll 1$ для справедливости приближения фиксированного спина ядра, при котором справедливы формулы (8)]. Поскольку время корреляции τ_c может намного превышать время столкновения (до 10^{-10} с по сравнению с 10^{-13} с) и может быть сравнимым с $1/\Omega$, релаксационные параметры должны быть рассчитаны с учетом этого обстоятельства [12].

Трудная в общем случае задача упрощается в связи с тем, что γ всегда может быть рассчитано по теории возмущений, и поэтому для вычисления γ^* достаточно знать автокорреляционные функции случайного поля.¹

¹ Параметры релаксации для возбужденного состояния Γ , Γ_k не могут быть рассчитаны в рамках теории возмущений. Поскольку, однако, $\gamma \ll \Gamma$, Γ_k , задача релаксации возбужденных состояний на стенке не возникает.

Обычно считается, что функция корреляции — экспонента, для которой квадрат компоненты Фурье частоты ω , $f(\omega)$, имеет вид

$$f(\omega) = f(0) [1 + \omega^2 \tau_c^2]^{-1}. \quad (10)$$

Отсюда следует простая связь коэффициента релаксации на поверхности $\gamma_x^{FF'}(\Omega\tau_c)$ с коэффициентом $\gamma_x^{FF'}(0)$, который выражается через константу скорости релаксации электронного спина на поверхности соотношением типа (8). Таким образом, имеем

$$\gamma_x^{FF'}(\Omega\tau_c) = \delta_{FF'}^{ct.} \gamma_x^{FF'}(0) + (1 - \delta_{FF'})^{ct.} \gamma_x^{FF'}(0) f(\Omega\tau_c)/f(0). \quad (11)$$

В результате при учете обоих механизмов релаксации параметры в (9) должны быть заменены на $\gamma_x^{FF'}(\Omega\tau_c)$

$$\gamma^{FF'}(\Omega\tau_c) = \delta_{FF'}^{eff.} \gamma^{FF'}(0) + (1 - \delta_{FF'})^{eff.} \gamma^{FF'}(0) \varphi. \quad (12)$$

Здесь $\gamma^{FF'}(0)$ выражаются через скорость релаксации электронного спина в объеме и на стенке, γ , а легко восстанавливаемый коэффициент φ зависит от отношения скоростей релаксации в объеме и на стенке и изменяется в интервале $[1 + \Omega^2 \tau_c^2]^{-1} \leq \varphi \leq 1$.

Таким образом, полные кинетические уравнения накачки содержат следующие безразмерные параметры: $A\tau$, A/γ , φ и $\Gamma\tau$ (для линии D_1) или $\Gamma_k\tau$ (для линии D_2). Стационарное решение первого параметра не содержит (разумеется, при условии $A\tau \ll 1$).

Макроскопические кинетические уравнения

Заселенности состояний определяют средние z -проекции угловых моментов в определенных сверхтонких состояниях

$$\left. \begin{aligned} F_z^{(F)} &= \sum_m n_{Fm} m, \\ \mathcal{F}_z^{(F)}(j) &= \sum_\mu N_{\mathcal{F}\mu}^j / N_j. \end{aligned} \right\} \quad (13)$$

Из общих уравнений вида (1) для заселенностей нельзя, вообще говоря, получить замкнутых уравнений для проекций F_z и \mathcal{F}_z . Это обусловлено тем, что в результате поглощения связываются компоненты матрицы плотности различных рангов. Однако в случае слабой накачки, когда в нулевом приближении распределение по подуровням основного состояния можно считать равновероятным, можно получить замкнутые уравнения первого порядка (по параметру A/γ) для проекций.

Таким путем из (1) получаем

$$[F_z^{(F)}]_{opt.} = -\frac{Aq}{2(2I+1)} \sum_{\mathcal{F}} \Psi_{\mathcal{F}}^F(j) + \frac{N^j}{\tau} \sum_{\mathcal{F}} \Phi_{\mathcal{F}}^F(j) \mathcal{F}_z^{(F)}, \quad (14a)$$

$$[N\mathcal{F}_z^{(F)}]_{opt.} = \frac{Aq}{2(2I+1)} \sum_F \Psi_F^{\mathcal{F}}(j) - \frac{N^j}{\tau} \mathcal{F}_z^{(F)}. \quad (14b)$$

Здесь $\Phi_{\mathcal{F}}^F(j)$, $\Psi_F^{\mathcal{F}}(j)$ и $\Psi_{\mathcal{F}}^F(j)$ равны

$$\Phi_{\mathcal{F}}^F(j) = \frac{1}{\mu} \sum_{qm} P_{Fm}^{\mathcal{F}\mu}(q, j) m = b_F^{\mathcal{F}j} \frac{g_1^F}{g_1^{\mathcal{F}}} \begin{Bmatrix} 1 & \mathcal{F} & \mathcal{F} \\ 1 & F & F \end{Bmatrix} (-1)^{F+\mathcal{F}}, \quad (15a)$$

$$\Psi_F^{\mathcal{F}}(j) = \frac{1}{q} \sum_{m\mu} P_{Fm}^{\mathcal{F}\mu}(q, j) \mu = \frac{1}{\sqrt{6}} b_F^{\mathcal{F}j} g_1^{\mathcal{F}} (-1)^{F+\mathcal{F}} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ F & \mathcal{F} & \mathcal{F} \end{Bmatrix}, \quad (15b)$$

$$\Psi_{\mathcal{F}}^F(j) = \frac{1}{q} \sum_{m\mu} P_{Fm}^{\mathcal{F}\mu}(q, j) m = \frac{1}{\sqrt{6}} b_F^{\mathcal{F}j} g_1^F (-1)^{F+\mathcal{F}} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ \mathcal{F} & F & F \end{Bmatrix}, \quad (15c)$$

$$g_1^F = [F(F+1)(2F+1)]^{1/2}.$$

Кроме того,

$$\sum_{\mathcal{F}} \Psi_{\mathcal{F}}^F(j) = (-1)^{-j-I+F} \frac{1}{\sqrt{6}} g_1^F (2j+1) (2F+1) \begin{Bmatrix} 1/2 & 1 & 1/2 \\ 1 & j & 1 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} I & F & 1/2 \\ 1 & 1/2 & F \end{Bmatrix}, \quad (16a)$$

$$\sum_F \Psi_{\mathcal{F}}^{\mathcal{F}}(j) = (-1)^{-1/2-I+\mathcal{F}} \frac{1}{\sqrt{6}} g_1^{\mathcal{F}} (2j+1) (2\mathcal{F}+1) \begin{Bmatrix} j & 1 & j \\ 1 & 1/2 & 1 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} I & \mathcal{F} & j \\ 1 & j & \mathcal{F} \end{Bmatrix}. \quad (16b)$$

Уравнения (14) не имеют стационарного решения, поскольку без учета релаксации накачка сильно поляризует систему. Однако, если к (14) добавлена релаксационная часть, то малая степень поляризации может быть обеспечена большой скоростью релаксации.

Изменения проекций $F_z^{(F)}$ и $\mathcal{F}_z^{(\mathcal{F})}$ в результате релаксации описываются известными уравнениями [13]

$$[\dot{F}_z^{(F)}]_{\text{рел.}} = - \sum_{F'} \gamma_1^{FF'} \frac{g_1^F}{g_1^{F'}} F_z^{(F')}, \quad (17a)$$

$$[N^j \dot{\mathcal{F}}_z^{(\mathcal{F})}]_{\text{рел.}} = - \sum_{\mathcal{F}'} \Gamma_1^{\mathcal{F}\mathcal{F}'} \frac{g_1^{\mathcal{F}}}{g_1^{\mathcal{F}'}} N^j \mathcal{F}_z^{(\mathcal{F}')}. \quad (17b)$$

Таким образом, кинетика слабой накачки описывается уравнениями

$$N^j \dot{\mathcal{F}}_z^{(\mathcal{F})} = [N^j \dot{\mathcal{F}}_z^{(\mathcal{F})}]_{\text{онт.}} + [N^j \dot{\mathcal{F}}_z^{(\mathcal{F})}]_{\text{рел.}}, \quad (18a)$$

$$\dot{F}_z^{(F)} = [\dot{F}_z^{(F)}]_{\text{онт.}} + [\dot{F}_z^{(F)}]_{\text{рел.}}. \quad (18b)$$

В стационарном случае уравнения (18a) представляют собой систему двух (линия D_1) или четырех (линия D_2) неоднородных уравнений для $\mathcal{F}_z^{(\mathcal{F})}$. Подстановка $\mathcal{F}_z^{(\mathcal{F})}$ в (18b) дает два уравнения для $F_z^{(F)}$. Видно также, что $F_z^{(F)}$ пропорционально $A_{\text{зф.}}/\gamma$, т. е. линейно по интенсивности света. Наконец, среднее значение электронного спина S_z вычисляется по формуле

$$S_z = \frac{1}{2I+1} [F_z^{(I+1/2)} - F_z^{(I-1/2)}]. \quad (19)$$

Итак, полученные кинетические уравнения описывают оптическую накачку атомов щелочных металлов линиями D_1 или D_2 при реальном механизме релаксации на атомах буферного газа и стенке.

Если релаксацией на стенке пренебречь, то в общем случае стационарная поляризация при условии малой относительной концентрации возбужденных атомов зависит от двух (A/γ и $\Gamma\tau$ для D_1) или четырех (A/γ и $\Gamma_1\tau$, $\Gamma_2\tau$, $\Gamma_3\tau$ для D_2) параметров. При слабой накачке ($A/\gamma \ll 1$) стационарная поляризация пропорциональна A/γ , причем множитель пропорциональности зависит от одного параметра $\Gamma\tau$ (для D_1) или трех параметров $\Gamma_1\tau$, $\Gamma_2\tau$, $\Gamma_3\tau$ (для D_2), определяющих степень смешивания подуровней верхнего состояния за оптическое время жизни. При учете релаксации на стенке стационарная поляризация зависит от дополнительного параметра φ . Выведенные кинетические уравнения использованы в работе [14] для вычисления стационарной поляризации при накачке линией D_1 и выяснения применимости приближения слабой накачки.

Литература

- [1] W. Happer. Rev. Mod. Phys., 44, 169, 1972.
- [2] K. Rosinski, T. Skalinski. Postepy Fisiki, 29, 3, 1978.
- [3] Е. И. Дашевская, Н. П. Пенкин, Ю. З. Ионих. В сб.: Физика электронных и атомных столкновений (матер. VII Всес. конф.), 21, ЛИЯФ, 1978.
- [4] Р. А. Житников, С. П. Дмитриев, В. А. Картошкин. В сб.: Физика электронных и атомных столкновений (матер. VII Всес. конф.), 57, ЛИЯФ, 1978.
- [5] R. A. Zhitnikov. In: Atomic Physics VI, 309, Zinatne, Riga, 1979.
- [6] W. Franzen. Phys. Rev., 105, 850, 1959.
- [7] F. A. Franz. J. R. Franz. Phys. Rev., 148, 82, 1966.

- [8] F. A. Franz, C. E. S o o g i a m o o r t h i. Phys. Rev., A8, 2390, 1973.
[9] И. И. Собельман. Введение в теорию атомных спектров. Физматгиз, М., 1963.
[10] A. Omont. J. Phys., 26, 26, 1965.
[11] B. H. Ребане, Т. К. Ребане. Опт. и спектр., 33, 405, 1972.
[12] M. Bouchiat. Etude par pompage optique de la relaxation d'atomes de rubidium, Notes techniques 146, 1965.
[13] A. Omont. Prog. Quant. Electr., 5, 69, 1977.
[14] Е. И. Дашевская, Ю. Л. Малинкевич. Опт. и спектр., 49, 460, 1980.

Поступило в Редакцию 7 августа 1979 г.