

УДК 539.184.52 : 546.56 + 546.57 + 546.59

ОПРЕДЕЛЕНИЕ РАДИАЦИОННОГО ВРЕМЕНИ ЖИЗНИ
НИЖНИХ РЕЗОНАНСНЫХ СОСТОЯНИЙ АТОМОВ
ПОДГРУППЫ МЕДИ (CuI, AgI, AuI)

Н. Н. Безуглов, В. Н. Горшков, А. Л. Ошерович и Г. Л. Плехоткина

Измерены времена жизни шести нижних резонансных уровней CuI, AgI и AuI с корректной поправкой на явление пленения излучения в конечном объеме направленного пучка. Полученные результаты сравниваются с радиационными временами в условиях почти полного отсутствия пленения излучения.

1. При исследовании процессов, связанных с испусканием квантов света резонансными состояниями атома, необходимо учитывать явление пленения излучения. Корректный учет пленения позволяет, измерив эффективное время жизни $\tau_{\text{эфф}}$ резонансного уровня при известной концентрации нормальных атомов N_0 , определить его радиационное время жизни τ_k , что значительно расширит область применения основных экспериментальных методов измерения τ_k . Анализ процесса увеличения продолжительности эффективного времени жизни при высвечивании возбужденных атомных состояний в условиях оптически плотного атомного пучка не может основываться на результатах теории переноса излучения, полученных для паронаполненной кюветы [1, 2]. Дело в том, что направленное движение поглощающих и излучающих частиц приводит к резкой зависимости спектральных характеристик излучения от ориентации относительно оси пучка испущенных атомами фотонов. Вследствие доплер-эффекта спектральная линия испускания сильно уширена вдоль направления движения атомов и сужена в направлении, ортогональном к оси пучка.

Ранее предпринимались попытки [3] приспособить результаты классической работы Холстейна [1] для теоретического описания увеличения эффективного времени жизни возбужденных состояний атома серебра в атомном пучке. Автор работы [3] допустил возможность перемещения многократно рассеянных фотонов в ортогональных к оси пучка направлениях, где доплеровский контур спектральной линии испускания имеет минимальную ширину, а вероятность поглощения квантов света максимальна. Такое предположение представляется неоправданным вследствие испускания фотонов во всех направлениях трехмерного пространства.

Цель настоящей работы заключается в следующем.

Показать на конкретных объектах исследования (резонансные уровни меди, серебра и золота) справедливость выводов теории пленения излучения [4] в конечном объеме направленного пучка. Сравнить результаты измерений τ_k резонансных уровней в условиях почти полного отсутствия пленения излучения со значениями τ_k , найденными путем введения поправки на пленение.

2. Измерение времен жизни резонансных уровней атомов меди, серебра и золота проводилось методом задержанных совпадений с использованием в качестве источника излучения скрещенных атомного и электронного пучков на установке, описанной в [5]. При этом геометрические параметры атомного пучка для всех трех элементов были одинаковыми и соответствовали указанным на рис. 1.

Для того чтобы использовать результаты теории пленения излучения, необходимо знание концентрации нормальных атомов N_0 исследуемых элементов

в объеме зоны возбуждения атомного пучка. Концентрация определялась следующим образом. Частицы атомного пучка после прохождения зоны возбуждения попадали на подложку, находившуюся при температуре жидкого азота, а затем взвешиванием определялась масса конденсированного вещества. Для определения корректности использованного нами метода взвешивания было предпринято (в случае серебра) дополнительное определение количества напыленного серебра химическим методом. Оба способа определения массы напыленного серебра дали одинаковые результаты.

3. Процесс высвечивания атомов в условиях оптически плотного атомного пучка рассмотрен в [4]. Как указывалось во введении, решение подобной задачи сильно усложнено из-за направленности движения атомных частиц в пучке.

Рассмотрим основные положения [4], необходимые для обработки приведенных ниже экспериментальных результатов, и сформулируем используемые нами в расчетах ограничения, накладываемые на геометрические параметры конического атомного пучка (рис. 1).

Отверстие 1 в атомном источнике можно считать точечным. Это допущение позволяет получить простой аналитический вид функции распределения частиц пучка по скоростям. Угол β коллимации пучка и отношение высоты H зоны возбуждения к ее расстоянию L от атомного источника предполагаются малыми: $\beta \ll 1$, $H/L \ll 1$ (в нашем случае $\beta = 0.3$, $H/L = 0.2$). Первое ограничение

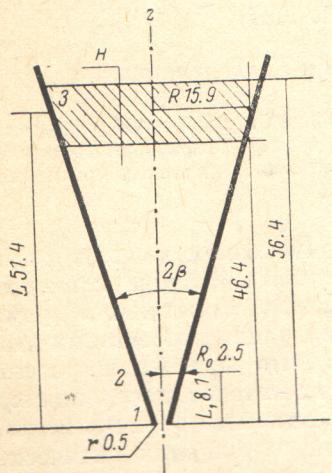


Рис. 1. Геометрические параметры атомного пучка.

Из небольшого круглого отверстия 1 радиуса r вылетают частицы вещества, которые с помощью круглой коллимирующей щели 2 поступают в зону возбуждения 3 в виде направленного конического пучка с углом раствора 2β .

($\beta \ll 1$) позволяет удерживать во всех приведенных ниже выражениях члены, не превосходящие по абсолютной величине β^2 . Учитывая второе ограничение, можно считать геометрические параметры пучка в зоне возбуждения электронным ударом не зависящими от координаты z .

Предполагается выполнимость принципа полного перераспределения по частотам [6], согласно которому спектральные коэффициенты испускания φ_y и поглощения k_y связаны соотношением

$$\varphi_y = k_y / \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu k_y. \quad (1)$$

Даже при перечисленной выше совокупности упрощающих ограничений задача расчета $\tau_{\text{эфф}}$ в случае атомного пучка (рис. 1) остается сложной. Для величины $\tau_{\text{эфф}}$ удается получить в явном аналитическом виде лишь граничные значения снизу (g_1) и сверху (g_2)

$$g_1 < \frac{\tau_{\text{эфф}}}{\tau_k} < g_2. \quad (2)$$

Если ограничиться членами, не превосходящими по абсолютному значению малой величины $\sim \beta^2$, то оказывается, что

$$g_2^{-1} = \Phi_1(k_0 R) + \beta \Phi_2(k_0 R) - \beta \Phi_3(k_0 R/\beta); \quad (3)$$

$$g_1^{-1} = G_1(k_0 R) - \beta G_2(k_0 R) + \beta [G_3(k_0 R/\beta) - \ln(\beta) G_4(k_0 R/\beta)]. \quad (4)$$

Функции Φ_1 и G_1 являются главными членами, определяющими граничные значения (2) для идеально коллимированного пучка ($\beta = 0$), а $\Phi_{2,3}$, $G_{2,3,4}$ играют роль поправочных слагаемых, учитывающих возможную в реальных условиях

угловую апертуру пучка. Параметр k_0 есть обычно используемый в литературе дошлеровский коэффициент поглощения в центре спектральной линии [4]; так что

$$x_0 \equiv k_0 R = \frac{\lambda^3}{8\pi^{1.5}\tau_k} \frac{F^*}{F_0} \frac{N_0}{v_0} R, \quad (5)$$

где R — радиус пучка в зоне возбуждения атомов электронным ударом, $v_0 = \sqrt{2kT/m}$ — тепловая скорость частиц газа в атомном источнике. Полученные в [4] аналитические представления Φ_i , G_i в виде однократных интегралов позволяют рассчитать функции g_1 и g_2 (2) для любых значений оптической толщины пучка $0 \leq x_0 \leq \infty$. Результаты расчета для одиночной резонансной линии приведены на рис. 2 при угле коллимации $\beta = 0.3$ (рис. 1).

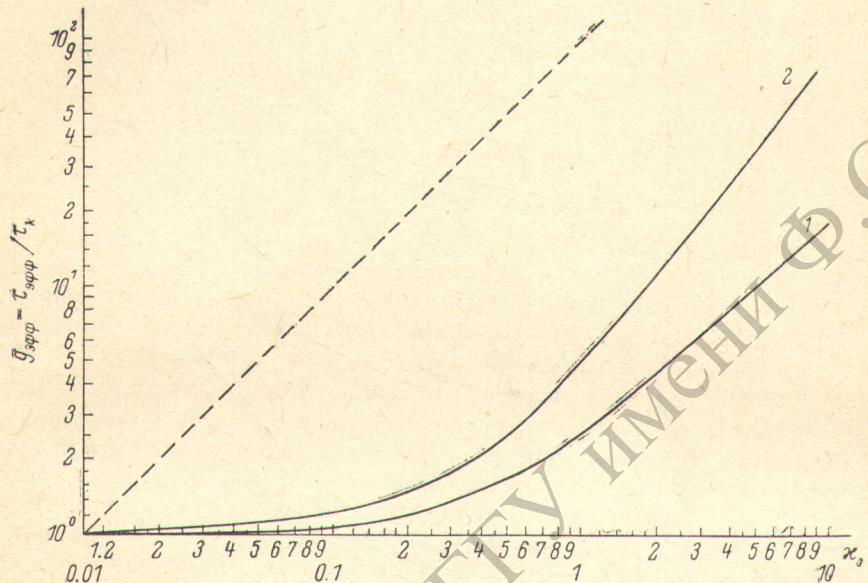


Рис. 2. Зависимость верхнего (g_2) и нижнего (g_1) граничных значений $\tau_{\text{эфф}}$ от оптической толщины x_0 атомного пучка; $\beta = 0.3$.

При больших величинах x_0 (≥ 10) удается получить точное асимптотическое выражение непосредственно для $\tau_{\text{эфф}}$

$$\frac{\tau_k}{\tau_{\text{эфф}}} = \frac{3.2}{3\pi x_0 \sqrt{\pi \ln(8x_0)}} [1 + 2\beta \ln(8x_0)]. \quad (6)$$

В формуле (6) опущены члены, пропорциональные β^2 . Если сравнить (6) для идеального пучка ($\beta = 0$) с результатом Холстейна [1] для цилиндрической паронаполненной кюветы, то при одинаковых оптических толщинах x_0 время $\tau_{\text{эфф}}$ в пучке в 1.5 раз больше, чем в кювете. Здесь же отметим, что метод Клозе [3], грубо говоря, получается из (6) пренебрежением единицей в сумме, стоящей в квадратных скобках. Для приведенных в [3] параметров атомного пучка такое пренебрежение недопустимо.

4. Приведенные выше соотношения справедливы при переносе излучения в частотах одиночной резонансной линии. Однако вследствие взаимодействия орбитального и ядерного магнитных моментов существует богатая СТС спектральных линий. В табл. 1 приведена необходимая информация о параметрах сверхтонкого расщепления рассматриваемых уровней, а также эффективная полуширина $\Delta\nu_D^{\text{эфф}}$ резонансных линий. Дошлеровская полуширина линий $\Delta\nu_D$ в зависимости от угла между направлением испущенного кванта света и осью пучка меняется в пределах $\beta v_0/v_0/c < \Delta\nu_D < v_0/v_0/c$. Более точный анализ показывает, что в качестве характерного значения $\Delta\nu_D^{\text{эфф}}$ следует принять величину $v_0/v_0/2c$ (в нашем случае $\beta = 0.3$). Как видно из табл. 1, СТС резонансных

линий, обусловленная расщеплением возбужденных состояний, оказывается под «шапкой» допплеровского уширения. По той же причине становится несущественным сдвиг $\Delta\nu$ линий двух изотопов друг относительно друга, для серебра $\Delta\nu \approx 120$ МГц, для меди $\Delta\nu \approx 240$ МГц. Наоборот, СТ расщепление основного состояния намного превосходит величину $\Delta\nu_D^{\text{эфф}}$.

Таким образом, перенос излучения осуществляется в спектрально разнесенных компонентах резонансного дублета, имеющих общий верхний уровень ($n^2P_{3/2, 1/2}^0$). В подобной ситуации не представляет труда видоизменить приведен-

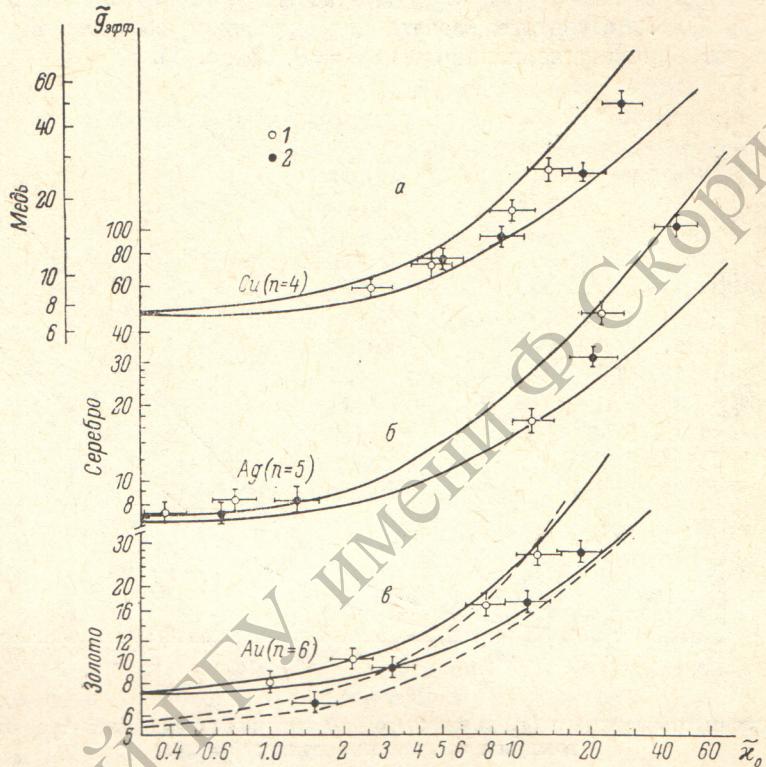


Рис. 3. Экспериментальная и теоретическая зависимости $\tilde{g}_{\text{эфф}}$ от величины оптической плотности \tilde{x}_0 (см. текст) атомного пучка.

Сплошные теоретические кривые получены из графиков рис. 2 путем пересчета функций (2) на наличие сверхтонкой структуры по соотношениям (7), (8).

ную выше теорию для одиночной линии. Относительные силы компонент дублета даются соотношениями $\alpha_i = F_i / (F_1 + F_2)$. Здесь F_i — стат. вес компоненты СТС основного состояния, на котором оканчивается i -линия дублета $\alpha_1 = 3/8$, $\alpha_2 = 5/8$ для Cu I; Au I; $\alpha_1 = 3/4$, $\alpha_2 = 1/4$ для Ag I. Оптические толщины $x_0^{(i)}$ согласно правилу Кирхгофа, распределяются между компонентами в соответствии с формулой $x_0^{(i)} = \alpha_i x_0$. Величина x_0 рассчитывается по (5) для одиночной резонансной линии. Окончательно пересчитанные на наличие СТС линий функции \bar{g}_2 (3) и \bar{g}_1 (4), имеют вид

$$\bar{g}_2^{-1}(x_0) = \sum_{i=1, 2} \alpha_i g_2^{-1}(\alpha_i x_0); \quad (7)$$

$$\bar{g}_1^{-1}(x_0) = \sum_{i=1, 2} \alpha_i g_1^{-1}(\alpha_i x_0). \quad (8)$$

Экспериментальные результаты по измерению $\tau_{\text{эфф}}$ возбужденных резонансных состояний $np^0 P_{3/2, 1/2}^0$ ($n=4, 5, 6$ для Cu I, Ag I и Au I соответственно) нанесены в виде точек на рис. 3 (a, b, v) в координатах: ось абсцисс — «оптическая толщина» \tilde{x}_0 (5), ось ординат — $\tilde{g}_{\text{эфф}} = \tau_{\text{эфф}} / \tau_k$ в предположении $\tau_k = 1$ нс. Дело в том, что значение τ_k является искомой, неизвестной нам величиной, которую

Таблица 1

Параметры сверхтонкого расщепления рассматриваемых уровней

Элемент	Уровни	Энергия, см ⁻¹	Константа СГС <i>A</i> , МГц	Допплеровская полуширина $\Delta\nu_D^{\text{эфф}}$ перехода $n^2P_J \rightarrow n^2S_{1/2}$, МГц
Cu I	$4^2P_{3/2}^0$	30784	209	~1000
	$4^2P_{1/2}^0$	30535	—	~1000
	$4^2S_{1/2}^0$	0	~6000	—
Ag I	$5^2P_{3/2}^0$	30473	37	~710
	$5^2P_{1/2}^0$	29552	—	~700
	$5^2S_{1/2}^0$	0	~2000	—
Au I	$6^2P_{3/2}^0$	41174	14	760
	$6^2P_{1/2}^0$	37359	—	690
	$6^2S_{1/2}^0$	0	~3050	—

естественно находить из требования наилучшего согласия экспериментальных и расчетных данных. Для этого необходимо на рис. 2 (со значениями функций \bar{g}_1 и \bar{g}_2 , пересчитанными по (7) и (8) для конкретного элемента) нанести семейство экспериментальных точек, отличающихся друг от друга значением τ_k и полученных из оригинала (рис. 3) путем сжатия осей \tilde{x}_0 ($x_0 = \tilde{x}_0/\tau_k$ — см. (5)) и $\tilde{g}_{\text{эфф}}$ ($g_{\text{эфф}} = \tau_{\text{эфф}}/\tau_k = \tilde{g}_{\text{эфф}}/\tau_k$) в τ_k раз, где τ_k измерено в нс. Для двойного логарифмического масштаба осей (рис. 2, 3) подобная процедура приведет к смещению точек оригинала (рис. 3) относительно графиков (рис. 2) на $\lg(\tau_k)$ единиц вниз и $\lg(\tau_k)$ единиц влево, т. е. к движению оригинала параллельно плоскости рис. 2 вниз по главной диагонали (штриховая прямая на рис. 2). Величина смещения при оптимальном расположении экспериментальных точек между теоретическими кривыми g_1 и g_2 позволяет определить значение τ_k . Смещения, приводящие к уходу эллипса ошибок какой-либо одной точки оригинала за пределы допустимой теорией области дают концевые значения интервала времени, в котором наиболее вероятно расположение величин τ_k .

Сплошные кривые (рис. 3) соответствуют обработке экспериментальных точек в результате выполнения описанной выше процедуры. Отметим, что в случае Cu I (рис. 3, а) и Ag I (рис. 3, б) радиационные времена жизни компонент тонкой структуры совпадают, и соответствующие им точки, обозначенные черными и белыми кружками, образуют единую кривую. Для более тяжелого элемента Au I (рис. 3, в) LS-связь оказывается нарушенной. Это выражается как в довольно сильном различии энергии тонких компонент (табл. 1), так и в явном несовпадении кривых, образованных черными ($\lambda = 2427.95$ Å) и белыми ($\lambda = 2675.95$ Å) кружками. Естественно, что τ_k для компонент тонкой структуры нижнего резонансного уровня Au I оказываются не равными друг другу (табл. 2).

Для исследованных нами резонансных уровней атомов меди и серебра были проведены измерения τ_k в условиях почти полного отсутствия пленения излучения. Для этого в камеру возбуждения вводился молекулярный пучок соединения меди CuS или серебра AgJ. Под действием электронного удара молекулы CuS и AgJ диссоциировали, и мы получали возбужденные состояния Cu I и Ag I. Так как время диссоциации мало ($10^{-14} \div 10^{-15}$ с), то оно не влияло на точность наших измерений.

Результаты измерений также представлены в табл. 2. Сравнение этих результатов со значениями τ_k для этих уровней, полученных при введении поправок к $\tau_{\text{эфф}}$ на пленение излучения в предыдущем эксперименте, показывает их хорошее согласие друг с другом. Это позволяет сделать вывод, что методика учета явления пленения излучения при измерении τ_k резонансных состояний вполне корректна.

Таблица 2
Радиационные времена жизни низких резонансных
состояний меди, серебра и золота

Элемент	Возбужденное состояние	τ_k , нс	Ссылка
Cu I	$4p\ ^2P_{1/2}^0$	7.2 ± 0.7	[7]
		7.2 ± 0.3	[8]
		7.1 ± 0.6	[9]
		5.0	[10]
		5.7	[11]
		7.0 ± 0.9	*
		7.8 ± 0.6	**
	$4p\ ^2P_{3/2}^0$	7.2 ± 0.7	[7]
		7.2 ± 0.3	[8]
		7.2 ± 1.0	[9]
		4.8	[10]
		5.6	[11]
Ag I	$5p\ ^2P_{1/2}^0$	7.4 ± 0.7	[12]
		7.0 ± 0.9	[13]
		7.5 ± 0.6	[14]
		7.3 ± 0.4	*
		7.0	[10]
		8.8	[11]
		8.8 ± 0.5	[12]
	$5p\ ^2P_{3/2}^0$	8.7 ± 1.0	[13]
		7.5 ± 0.7	[14]
		7.5 ± 0.6	*
		7.4 ± 0.4	**
		6.4	[10]
Au I	$6p\ ^2P_{1/2}^0$	7.9	[11]
		8.7 ± 0.4	[12]
		7.3 ± 0.4	[13]
	$6p\ ^2P_{3/2}^0$	6.5 ± 0.6	[3]
		7.0 ± 0.8	[14]
		7.5 ± 0.7	*
		7.4 ± 0.5	**

Приложение.

* — значения τ_k , полученные нами путем введения поправки к $\tau_{\text{эфф}}$ на пленение излучения (рис. 3).

** — значения τ_k , полученные нами при введении в зону возбуждения химических соединений меди (CuS) и серебра (AgJ).

Авторы выражают глубокую благодарность Н. П. Пенкину за постоянный интерес к работе и полезное обсуждение результатов.

Литература

- [1] T. Holstein. Phys. Rev., 72, 1212, 1947; 83, 1159, 1951.
- [2] Н. Н. Безуглов. Опт. и спектр., 52, 805, 1982.
- [3] J. Z. Klose. Astrophys. J., 198, 229, 1975.
- [4] Н. Н. Безуглов. Автореф. канд. дисс., ЛГУ, 1980.
- [5] А. Л. Ошерович, Г. Л. Плехоткина, В. Р. Обидин. Опт. и спектр., 50, 1046, 1981.
- [6] В. В. Иванов. Перенос излучения и спектры небесных тел. «Наука», М., 1969.
- [7] L. A. Levin, B. Budick. Bull. Amer. Phys. Soc., 11, 455, 1966.
- [8] P. T. Cunningham, L. K. Link. J. Opt. Soc. Am., 57, 1000, 1967.
- [9] Ю. И. Малахов. Опт. и спектр., 44, 214, 1978.
- [10] И. Ю.-Ю. Славенас. Автореф. канд. дисс., Л., 1964.
- [11] R. Haefner, W. H. E. Schwarzs. J. Phys. B, 11, 2975, 1978.
- [12] T. Andersen, K. A. Jessen, G. Sorensen. Nucl. Instr. Methods, 90, 35, 1971.
- [13] K. P. Selter, H.-J. Kupze. Astrophys. J., 221, 713, 1978.
- [14] N. L. Moise. Astrophys. J., 144, 774, 1966.