

**ПРОЦЕССЫ
ПЕРЕНОСА
ЭНЕРГИИ
В ПАРАХ
МЕТАЛЛОВ**

РИГА 1983

Министерство высшего и среднего специального образования
Латвийской ССР

Латвийский ордена Трудового Красного Знамени
государственный университет имени Петра Стучки

Проблемная лаборатория спектроскопии

ПРОЦЕССЫ ПЕРЕНОСА ЭНЕРГИИ В ПАРАХ МЕТАЛЛОВ

СБОРНИК НАУЧНЫХ ТРУДОВ

Латвийский государственный университет им. П. Стучки

Рига 1983

Процессы переноса энергии в парах металлов: Сборник научных трудов. - Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983. - 186 с.

В сборник включены оригинальные статьи, в которых отражены результаты исследований процессов возникновения и разрушения поляризационных моментов при оптической накачке двухатомных молекул, возбуждения высоких состояний атома натрия при столкновении двух резонансно-возбужденных атомов 3^2P , возбуждения атомов натрия и бария электронным ударом из состояний $Na(3^2P_{3/2})$ и $Ba(5^1D_2)$, молекулярно-атомных процессов переноса энергии при возбуждении паров щелочных металлов излучением Kr^+ -лазера. Сообщается о зависимости эффективных сечений столкновений от скорости сталкивающихся частиц в неоне, об ионизационных столкновениях в оптически возбужденных пучках атомов металлов, о процессах образования метастабильных атомов и молекул при импульсном возбуждении паров дигалогенидов свинца. Приведен расчет низколежащих термов $3\Sigma_g^+$ димера калия. Публикуются статьи по обработке интерферограммы Фабри-Перо, технологии создания и свойствах различных высокочастотных безэлектродных ламп и др. Работы выполнены в Латвийском, Ленинградском и Ужгородском университетах, ВНИИИС им. А. Н. Лодыгина, ИНХ и ФЭИ АН ЛатвССР.

Сборник рассчитан на научных работников, специализирующихся в области оптики и спектроскопии, физики низкотемпературной плазмы, квантовой электроники, квантовой химии, а также на студентов и аспирантов этих специальностей.

Табл. 16, ил. 63, библиогр. 213 назв.

Статьи, вошедшие в сборник, закончены и передаются в научную часть ЛГУ им. П. Стучки в сентябре 1982 года.

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ: д-р физ.-мат. наук, проф. Э. К. Крауля (отв. ред.), канд. физ.-мат. наук Э. М. Андерсон, канд. физ.-мат. наук, доц. М. Л. Янсон.

Печатается по решению редакционно-издательского совета ЛГУ им. П. Стучки

П 20402-021у 81.83.1704020000
М 812(II)-Б

© Латвийский
государственный
университет
им. П. Стучки, 1983

LVU ZINĀTNISKA
BIBLIOTĒKA
549.11.83

ОПТИЧЕСКАЯ НАКАЧКА И ИНТЕРФЕРЕНЦИЯ СОСТОЯНИЙ В ДВУХАТОМНЫХ МОЛЕКУЛАХ

1. Введение

В последние несколько лет в ЛГУ им. П. Стучки выполнялся цикл работ /1-19/, посвященных оптической накачке рондбронных уровней гомоядерных двухатомных молекул I и II группы при оптическом возбуждении линиями газовых лазеров. Под оптической накачкой здесь будем подразумевать создание при поглощении света поляризационных моментов /20, 21/ как нижнего уровня φ_g^k , так и верхнего уровня f_a^k (здесь, K - ранг тензора, $0 \leq 2g < 2J''$, $0 \leq K \leq 2J'$; g, Q - его проекции, $-g < g < g$, $-K < Q < K$). Возникновение моментов $g, Q \neq 0$ во внешнем магнитном поле можно отнести к группе явлений интерференции зеемановских состояний, как вырожденных (эффект Ханле), так и невырожденных (квантовые биения) /22/.

Основное внимание в /1-19/ уделено развитию методов создания и исследования в лазерно-индуцированной флуоресценции (ЛИФ) оптической накачки отдельных колебательно-вращательных уровней v^*, J^* основного электронного состояния. В частности, впервые исследован эффект Ханле уровня v^*, J^* /4, 5, 8, 9, 13-15/, зарегистрирован резонанс квантовых биений /14, 16/, позволяющий измерить фактор Ланде основного состояния, неизвестный для большинства димеров. Развита метод исследования релаксации по кинетике переходного процесса /10-12, 17/. Методы применены для исследования молекул Na_2 , K_2 , $^{130}Te_2$ в парах соответствующих элементов.

В ряде случаев разработанная для основного состояния методика могла быть легко применена для измерения характеристик возбужденного уровня ν', J' . Так были определены ранее неизвестные времена жизни, константы релаксации, факторы Ланде для AO_u^+ и BO_u^+ состояний $^{130}\text{Te}_2 / 19 /$.

Настоящая статья написана с целью рассмотреть развитые методы с применением аппарата поляризационных моментов, а также привести сводку полученных экспериментальных результатов.

2. Уравнения движения поляризационных моментов

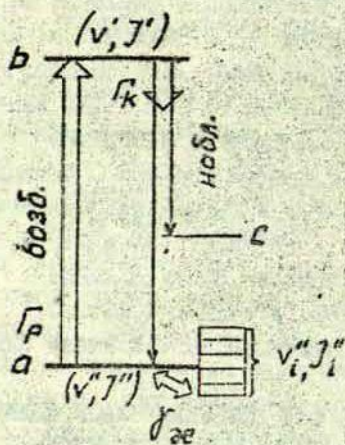
Пусть лазерное излучение видимого диапазона вызывает со скоростью Γ_p в двухатомной молекуле оптический переход $a \rightarrow b$ с уровня ν'', J'' основного электронного состояния на уровень ν', J' возбужденного электронного состояния (рис. 1). Для щелочных димеров Na_2 и K_2 это переходы из

состояния $X^1\Sigma_g^+$ в состояния $A^1\Sigma_u^+$ либо $B^1\Pi_u$. Для Se_2 и особенно Te_2 выполняется случай связи "с" по Гунду, и чаще всего реализуются переходы из состояния XO_g^+ в AO_u^+ и BO_u^+ состояния. В переходе связываются уровни с большими значениями угловых моментов - порядка нескольких десятков.

Большое преимущество в описании процесса дает применение уравнений для матриц плотности в представлении неприводимых тензорных операторов, или в \mathcal{M}_q - представлении [20, 21]. При этом

Рис. 1. Схема переходов при оптической накачке димеров.

записывается система уравнений для коэффициентов разложе-



ния матрицы плотности состояний $|a\rangle$ и $|b\rangle$ по неприводимым тензорным операторам, т.е. поляризационных моментов φ_q^x нижнего состояния и f_a^K - верхнего. Такие уравнения известны для произвольных значений угловых моментов $|23/$, но их решение в общем случае затруднительно. Тем не менее особенности молекулярной системы позволяют внести упрощения, существенно облегчающие задачу. Это, во-первых, возможность при $J \gg I$ перейти к асимптотике $J \rightarrow \infty$. Во-вторых, можно использовать упрощенное описание релаксационных процессов. Так, ввиду большого числа разрешенных спонтанных переходов во флуоресценции обратные спонтанные переходы лишь в очень небольшой степени заселяют исходный уровень a (наличие сильной "уточки" по терминологии /24/), т.е. их скорость Γ_{ba} много меньше полной скорости Γ распада уровня b , см. рис. I. В ряде случаев, например, для $X-A$, $X \rightarrow B$ переходов в Na_2 и K_2 имеет место $\Gamma_p \ll \Gamma$, и роль вынужденных переходов $b \rightarrow a$ также можно пренебречь. В этих условиях основным механизмом релаксации созданных в процессе оптической накачки поляризационных моментов нижнего уровня φ_q^x является безызлучательный обмен с моментами $i\varphi_q^x$ набора, густо расположенных в пределах $kT \sim 0,05$ эВ уровнях (v_i^e, J_i^e). Возможные элементарные процессы релаксации проанализированы в /17, 25-27/. Напомним, что, в частности, для K_2 колебательный квант равен приблизительно 10^{-2} эВ, а вращательный 10^{-5} эВ. Следовательно, в определенной мере оправдано допущение о том, что уровни (v_i^e, J_i^e) в процессе релаксации поставляют только заселенность, т.е. моменты нулевого ранга $i\varphi_0^0$. Кроме того, при слабой накачке парциальный вклад одного уровня (v_i^e, J_i^e) невелик, и можно принять, что они остаются заселенными термически равновесно.

Обозначим число актов разрушения моментов φ_q^x уровня a в единицу времени в единице объема через λ_q^x , а число актов их восстановления - через δ_{q0}^x . Сказанное выше позволяет записать систему уравнений поляризационных моментов во внешнем стационарном магнитном поле в виде /16/

$$\dot{f}_a^k = \Gamma_p \sum_{\mathcal{F}} \chi_{\mathcal{F}} \left\{ \phi^{(\mathcal{X})} \otimes \varphi^{(\mathcal{X})} \right\}_a^k - \Gamma_p \sum_{\mathcal{X}\mathcal{K}'} A^{\mathcal{X}\mathcal{K}'} \left\{ \phi^{(\mathcal{X})} \otimes f^{(\mathcal{K})} \right\}_a^k - \Gamma_k f_a^k + iQ \mathcal{Q} f_a^k; \quad (1a)$$

$$\dot{\varphi}_q^{\mathcal{X}} = -\Gamma_p \sum_{\mathcal{X}\mathcal{X}'} \chi_{\mathcal{X}\mathcal{X}'} A^{\mathcal{X}\mathcal{X}'} \left\{ \phi^{(\mathcal{X})} \otimes \varphi^{(\mathcal{X}')}\right\}_q^{\mathcal{X}} + \Gamma_p \sum_{\mathcal{F}} \chi_{\mathcal{F}} \left\{ \phi^{(\mathcal{X})} \otimes f^{(\mathcal{K})} \right\}_q^{\mathcal{X}} + \Gamma_{ba} C_{\mathcal{X}} \delta_{k\mathcal{X}} \delta_{a\mathcal{Q}} f_a^k + \lambda_q^{\mathcal{X}} \delta_{\mathcal{X}0} \delta_{\mathcal{Q}0} - \mathcal{J}_{\mathcal{X}}^{\mathcal{X}} \varphi_q^{\mathcal{X}} + i\mathcal{Q} \omega \varphi_q^{\mathcal{X}}. \quad (1b)$$

Здесь $\left\{ \phi^{(\mathcal{X})} \otimes \varphi^{(\mathcal{X}')}\right\}_q^{\mathcal{X}} = \sum_{\mathcal{F}\mathcal{Q}'} C_{\mathcal{X}\mathcal{F}}^{\mathcal{X}\mathcal{Q}'} \varphi_{\mathcal{F}}^{\mathcal{X}}(\vec{e}) \varphi_q^{\mathcal{X}}$ - непроводимое тензорное произведение, \vec{e} - вектор поляризации возбуждающего света, $C_{\mathcal{X}\mathcal{F}}^{\mathcal{X}\mathcal{Q}'}$ - коэффициент Клебца-Гордана, $\varphi_{\mathcal{F}}^{\mathcal{X}}(\vec{e})$ - функция, введенная М. Дьяконовым /20/. Коэффициенты $\chi_{\mathcal{F}\mathcal{X}\mathcal{X}'}$ и $A^{\mathcal{X}\mathcal{X}'}$ выражаются через $9j$ - и $6j$ - символы /16/, но в пределе $J', J'' \rightarrow \infty$ они совпадают и упрощаются до /17/

$$A^{\mathcal{X}\mathcal{X}'} = (-1)^{\Delta} \frac{\Pi_{\mathcal{X}\mathcal{X}'}}{\Pi_{\mathcal{X}}} C_{1\Delta}^{\mathcal{X}0} {}_{1-\Delta} C_{\mathcal{X}0}^{\mathcal{X}'0}, \quad (2)$$

где $\Delta = J' - J''$. Первые два члена в (1 а, б) описывают поглощение и вынужденное испускание, члены $\Gamma_k f_a^k$ и $\mathcal{J}_{\mathcal{X}}^{\mathcal{X}} \varphi_q^{\mathcal{X}}$ - безызлучательную релаксацию моментов f_a^k и $\varphi_q^{\mathcal{X}}$, член $\lambda_q^{\mathcal{X}} \delta_{\mathcal{X}0} \delta_{\mathcal{Q}0}$ - восстановление момента φ_0^0 . Член $\Gamma_{ba} C_{\mathcal{X}} \delta_{k\mathcal{X}} \delta_{a\mathcal{Q}} f_a^k$ описывает спонтанные переходы, причем $C_{\mathcal{X}} = 1$ для $J', J'' \rightarrow \infty$. Последние члены в (1 а, б) описывают

действие внешнего магнитного поля H : $\Omega = g_b \mu_0 H / \hbar$ и $\omega = g_a \mu_0 H / \hbar$ есть частоты магнитного расщепления основного и возбужденного уровней.

Решение (I) даёт возможность записать через моменты f_a^k экспериментально наблюдаемую величину - интенсивность ЛДФ с поляризацией \vec{e}' на некотором переходе $a \rightarrow c$ из прогрессивной флуоресценции. В асимптотическом пределе $J \rightarrow \infty$

$$I(\vec{e}') \sim (-1)^{\Delta} \sum_k C_{1\Delta}^{k0} (-1)^{\Delta} \sum_a f_a^k \Phi_{-a}^k. \quad (3)$$

Перейдем к рассмотрению реализованных в [1-19] конкретных случаев оптической накачки.

3. Стационарное возбуждение

Рассмотрим случай стационарного возбуждения $\Gamma_p = const$, приводящего к $f_a^k = \varphi_q^x = 0$. Тогда (I) есть система линейных уравнений порядка $(2J'+1)^2 + (2J'+1)^2$. И хотя, учитывая $f_{-a}^k = (-1)^k (f_a^k)^*$, $\varphi_q^x = (-1)^q (\varphi_{-q}^x)^*$ (см. [20]), число независимых неизвестных уменьшается, численное решение системы при $J', J'' \sim 100$ чрезвычайно затруднительно. Пути алгоритмизации задачи, а также возможности обрезания системы для рангов x, k , больших некоторого предела, проанализированы в работе М.П. Аузиньша, находящейся в печати. Практически численное решение (I) выполнено в [18] в предположении $\varphi_q^x = f_a^k = 0$ для $k, x < 6$.

Несколько иным подходом к решению (I) является разложение в ряд по параметру Γ_p / J_x , позволяющее в некоторых простых случаях получить аналитическое выражение для φ_q^x и f_a^k . Рассмотрим наиболее простой случай отсутствия магнитного поля $H=0$ (т.е. $\omega = \Omega = 0$) при возбуждении линейно поляризованным светом. Ось квантования в этом случае можно выбрать вдоль светового вектора \vec{E} , что при-

водит к созданию поляризационных моментов только с нулевыми проекциями $Q = q = 0$. Пусть $a \rightarrow b$ есть переход Q -типа, когда $J' = J''$. Пренебрегая вынужденными и обратными спонтанными переходами, для отличных от нуля f_a^k получаем из (1а) /17/

$$f_0^0 = \frac{1}{3} \Gamma_p \Gamma_0^{-1} [\varphi_0^0 + 2 \varphi_0^2]; \quad (4a)$$

$$f_0^2 = \Gamma_p \Gamma_2^{-1} \left[\frac{2}{15} \varphi_0^0 + \frac{11}{21} \varphi_0^2 + \frac{12}{35} \varphi_0^4 \right]. \quad (4b)$$

Значения φ_0^x, f_0^k из (1) будем искать в виде ряда

$$\begin{aligned} \varphi_0^x &= \varphi_0^{(0)x} + \varphi_0^{(1)x} + \varphi_0^{(2)x} + \dots, \\ f_0^k &= f_0^{(0)k} + f_0^{(1)k} + f_0^{(2)k} + \dots \end{aligned} \quad (5)$$

Выберем следующую нормировку: в нулевом приближении в отсутствие света накачки $\varphi_0^{(0)x} = n_0^{(0)x} \delta_{x0} \delta_{q0}$, где $n_0^{(0)x}$ - концентрация частиц в состоянии $|a\rangle$. Подставив φ_0^x в (4), а затем в (3), получаем интенсивность ЛИФ в первом приближении - случай "линейного отклика" ансамбля молекул. Приведем выражение для нормированной величины, которую оказалось удобным измерять в эксперименте, - степени линейной

поляризации $\rho = \frac{I^{\parallel} - I^{\perp}}{I^{\parallel} + I^{\perp}}$, где световые потоки I^{\parallel}, I^{\perp} поляризованы параллельно и перпендикулярно оси квантования соответственно

$$\rho^{(1)} = \frac{3}{5 \Gamma_2 / \Gamma_0 + 1}. \quad (6)$$

Как и следовало ожидать, при очень слабой накачке $\Gamma_p / \delta_{x0} \rightarrow 0$ величина ρ не зависит от скорости поглощения Γ_p . Она зависит лишь от отношения скоростей распада выстраи -

вания Γ_2 и заселенности Γ_0 уровня B .

Для расчета второго приближения $f_a^{(2)}$ нужно знать первое приближение $\varphi_q^{(1)}$. Получаем его, подставив $\varphi_q^{(1)}$ в (16):

$$\varphi_q^{(2)} = -\frac{\Gamma_p}{f_x} \sum_{x, x'} A_{xx'} \left\{ \Phi^{(x)} \otimes \varphi^{(x')} \right\} + \frac{\lambda_q}{f_x} \delta_{x0} \delta_{q0} \quad (7)$$

Напомним, что в нашей модели накачка не меняет заселенность других состояний $\varphi_0^{(1)}$, в связи с чем $\lambda_0^{(1)} = 0$ и последний член в (7) исчезает. Подстановка (7) в тензорное произведение (1a) позволяет получить второе приближение $f_a^{(2)}$. Это можно наглядно представить следующим образом: если действие света накачки на $\varphi_q^{(1)}$ приводит к $f_a^{(2)}$ (линейный отклик), то повторное его действие за время $\sim f_x^{-1}$ на $\varphi_q^{(1)}$ (нелинейный эффект) дает $f_a^{(2)}$ и позволяет рассчитывать с точностью до второго приближения $I_{\pi, \sigma}^{(2)}$ и $\rho^{(2)}$. Повторение процедуры приводит к $\varphi_q^{(2)}$ и к третьему приближению $f_a^{(3)}$. Несмотря на громоздкость, приведем здесь рассчитанные с точностью до 0,001 значения $\varphi_q^{(2)}$:

$$\varphi_0^{(2)} = \left[1 - \frac{\Gamma_p}{f_0} \left(0,333 - 0,111 \frac{\Gamma_p}{f_0} - 0,089 \frac{\Gamma_p}{f_2} \right) \right] \varphi_0^{(1)}$$

$$\varphi_0^{(2)2} = -\frac{\Gamma_p}{f} \left[0,133 - 0,044 \frac{\Gamma_p}{f_0} - 0,070 \frac{\Gamma_p}{f_2} \right] \varphi_0^{(1)} \quad (8)$$

$$\varphi_0^{(2)4} = 0,025 \frac{\Gamma_p^2}{f_2 f_4}$$

Заметим, что в первом приближении внизу возникает, кро-

ие заселенности φ_0^0 , характеризующий выстраивание момент φ_0^2 , а наверху моменты f_0^0 и f_0^2 , причем связанные только с φ_0^0 . Во втором приближении внизу создается также гексадекапольный момент φ_0^4 , а φ_0^2 переносится наверх (т.е. связывается с f_0^0 и f_0^2), обеспечивая проявление в ЛИФ с уровня b оптического выстраивания уровня a . В следующем приближении внизу добавляется φ_0^6 , а φ_0^4 переносится наверх и проявляется в ЛИФ. Точность приближений (в предположении равенства всех $\lambda_e = \lambda$, $\Gamma_k = \Gamma$) демонстрирует рис. 2, где пунктиром представлен классический расчет степени поляризации в модели дипольных осцилляторов

/25/, который точен для $J' \rightarrow \infty$, однако, естественно, не позволяет ввести разные скорости релаксации для моментов различного ранга. Из рисунка видно, что для $\Gamma/\gamma \geq 1$, (это довольно часто реализуется в экспериментах) точность даже третьего приближения может оказаться неудовлетворительной, и тогда следует пользоваться численным решением (1) с включением моментов более высокого ранга.

Эффект уменьшения P с ростом Γ/γ

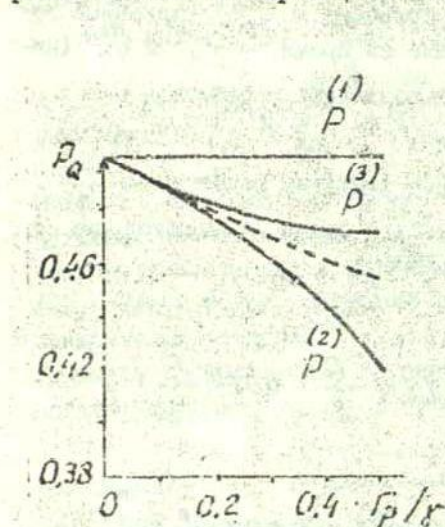


Рис. 2 Расчет зависимости степени поляризации P от Γ/γ в различных приближениях; пунктиром показан классический расчет.

бы использован в /25/, а также в ряде работ /1, 3, 4, 7/ для детектирования явления оптической накачки основного со-

стояния Na_2 и K_2 .

4. Стационарное возбуждение во внешнем магнитном поле

Система (I) должна решаться при наличии магнитного поля $\vec{H} \parallel \vec{E}$. Ось квантования выбирается вдоль \vec{H} . Пример численного решения (I) приведен на рис.3 в предположении $f_0^K - \varphi_9^{xc} = 0$ для $K, x \geq 8^*$. Параметры выбраны соответствующие эксперименту /8,9/ на K_2 при возбуждении He-Ne лазером перехода $(1,72)X^1\Sigma_g^+ \rightarrow (8,72)B^1\Pi_u$, а именно: $f_p = 10^6 \text{ с}^{-1}$, $f_K = \Gamma = 8,62 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$, $g_b = 1,90 \cdot 10^{-4}$, $g_a = 1,18 \cdot 10^{-5}$. На рис.3а сплошными кривыми представлены действительные части моментов нижнего уровня при одинаковых $f_x = 0,3 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$ в зависимости от параметра $\omega/f_x \sim H$. На рис.3б изображена соответствующая зависимость степени поляризации ЛИФ, наблюдаемой вдоль вектора \vec{E} , т.е. в геометрии, соответствующей экспериментам /8,9/. При такой геометрии $P(0) = 0$. Возрастание P с ростом $\omega/f_x \sim H$ есть проявление разрушения магнитным полем поляризационных моментов φ_9^x нижнего уровня (см. рис.3а), названный в /4,5/ эффектом Ханле основного состояния ψ', J'' . Убывание P при дальнейшем росте H есть сигнал Ханле от верхнего уровня ψ', J' .

Интересно проследить за структурой сигнала вблизи $H = 0$, показанной на рис.3б в увеличенном масштабе справа. Чтобы выяснить, момент какого ранга приводит к характерному дополнительному пику, были проведены расчеты для $f_x < 6 = 0,3 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$ и $f_6 = 0,3 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$, т.е. для случаев, когда момент шестого ранга релаксирует на два порядка быстрее. Расчетные данные представлены кружками на рис.3а,б. В этом случае момент φ_6^6 практически исчезает и вместе с ним пропадает дополнительный пик вблизи нуля. Следовательно, его нельзя интерпретировать как резонанс гексадекапольного момента с $x = 4$, как ошибочно вслед за /28/ предполагалось нами в /8,9/. Такая структура есть проявление резонанса поляризационного момента шестого ранга при разрушении маг-

*) Расчеты выполнены совместно с М.П.Аузиньшем.

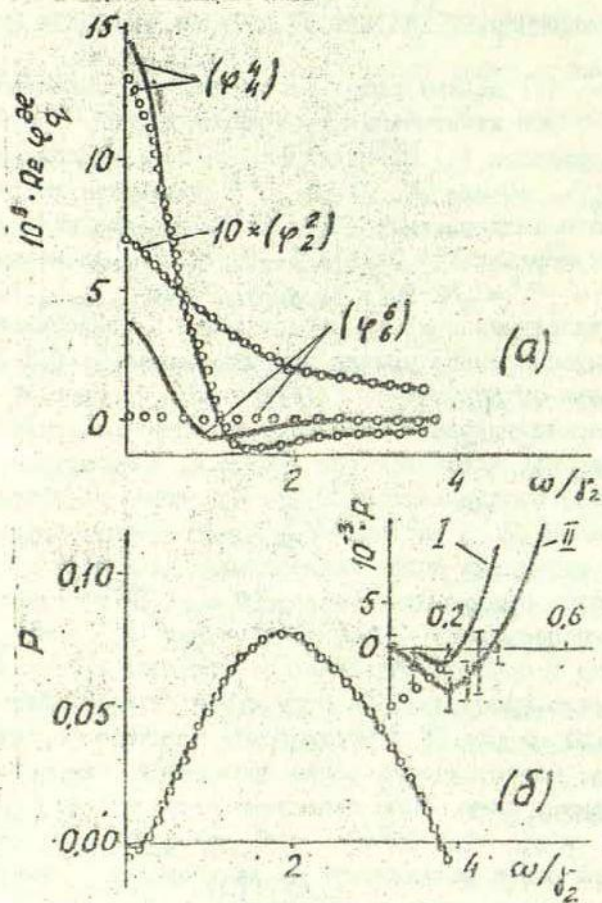


Рис.3. Действительные части поляризационных моментов (а) и соответствующие сигналы в степени поляризации ЛИФ (б).

нитным полем когерентности между $|\Delta M''| = 6$. Результаты эксперимента [8,9], подтверждающие наличие такого пика в $K_2 \cdot (1,72) X^1 \Sigma_g^+$, нанесены на рис.3б, где $\Gamma_p = 10^6 \text{ с}^{-1}$ для

кривой I и $2 \cdot 10^6 \text{с}^{-1}$ для кривой II.

5. Модулированное возбуждение

Как следует из материала, представленного в §§ 3,4 (см. рис.2,3), сигналы ЛИФ при стационарном возбуждении позволяют определить лишь безразмерные параметры, например $\Gamma_p/\delta x$ и ω/γ_x . Прямое измерение γ_x , а также Γ_K и факторов Ланде g_a, g_b требует возбуждение модулированным светом.

Рассмотрим метод, предложенный в /10,27/ и использованный также в /11,12,17/, состоящий в прямоугольной модуляции интенсивности лазерного луча, попеременно превращающей его из опустошающего нижний уровень в пробный (рис.4а) с последующей регистрацией переходного процесса в ЛИФ (см. рис.4б). Ширина фронтов нарастания и спада Δt должна быть

много меньше γ_x^{-1} , и, в свою очередь, $\gamma_x \ll \Gamma_K$. Интервалы времени T и T_0 должны значительно превышать γ_x^{-1} . Тогда интенсивность $I(t)$ сигнала ЛИФ можно разделить на следующие зоны (см.рис.4б): I- переходный процесс после включения накачки длительностью $\sim (\gamma_x^{-1} + \Gamma_p^{-1})$; II - стационарное "оптически откачанное" состояние $|a\rangle$; III - переходный процесс для ослабления луча длительностью $\sim \gamma_x^{-1}$ после

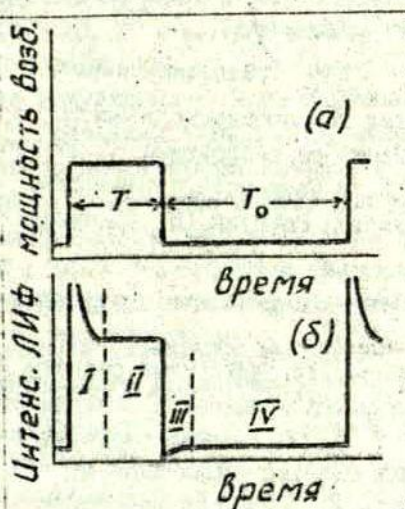


Рис.4 Временная зависимость интенсивности возбуждения (а) и ЛИФ (б).

ослабления луча до пробного; IV - термически равновесное состояние $|a\rangle$.

Именно переходный процесс III в районе линейного отклика системы прямо отражает термализацию оптически "откачанного" нижнего уровня. Описание в терминах поляризационных моментов в принципе позволяет выделить вклад в процесс релаксации отдельных $\varphi_q^x / |7/$.

В отсутствие магнитного поля снова выберем ось квантования при линейно поляризованном возбуждении вдоль \vec{E} , тогда $\Omega = \varphi = 0$ и выполняются формулы (4). В области II мы имеем случай стационарного возбуждения точно такой, какой описан в §2. В области IV для состояния $|a\rangle$ отличен от нуля только момент $\bar{I}^0 \varphi_0^0$. Моменты $\bar{I}^x \varphi_0^x(t)$ для переходного процесса III, где $\Gamma_p \ll \gamma_x$, есть точные решения зависящей от времени системы (2) и имеют вид для $x = 0$

$$\bar{I}^0 \varphi_0^0(t) = (\bar{I}^0 \varphi_0^0 - \bar{I}^0 \varphi_0^0) \exp[-\gamma_0^0(t-t_0)] + \bar{I}^0 \varphi_0^0 \quad (9a)$$

и для $x = 2, 4, \dots$

$$\bar{I}^x \varphi_0^x(t) = \bar{I}^x \varphi_0^x \exp[-\gamma_x^x(t-t_0)] \quad (9b)$$

Понятно, что заселенность $\bar{I}^0 \varphi_0^0(t)$ восстанавливается до $\bar{I}^0 \varphi_0^0$ по (9a), в то время как остальные моменты $\bar{I}^x \varphi_0^x(t)$ релаксирует к нулевому значению со скоростями γ_x^x по (9b). Расчет $\bar{I}^x \varphi_0^x$ описан в §3. В частности, с точностью до третьего приближения выполняются формулы (8), принимая $\varphi_0^0 = \bar{I}^0 \varphi_0^0 = n_{j_1} j_1$. Подставляя (8) в (9), (9) в (5), а затем (5) в (4), можно получить выражение для интенсивностей ЛИФ $\bar{I}^x I^x(t)$, $\bar{I}^x I^0(t)$ на переходе $\omega \rightarrow \omega_0$ в области переходного процесса III. Численные расчеты приведены в /7/, они показывают, что временная зависимость сигнала ЛИФ $\bar{I}^x I^x(t)$ либо $\bar{I}^x I^0(t)$ очень слабо отличается от моноэкспоненциальной аппроксимации даже в предположении $\Gamma_p = 1, 1 \gamma_x$, $\gamma_4 = \gamma_2 = 2\gamma_0$ (в действительности различия между γ_x^x ожидаются гораздо меньше). Кроме того, различия в показателях экспонент для $\bar{I}^x I^x(t)$ и $\bar{I}^x I^0(t)$ при этом составляют всего около 15%. Наличие шума в реальных экспериментальных сигналах ЛИФ делает

проблематичным раздельное определение J_0 , J_2 и J_4 в экспериментах такого типа.

6. Модулированное возбуждение во внешнем магнитном поле

Применение модулированного, в частности, по амплитуде возбуждения в сочетании с внешним магнитным полем дает возможность наблюдать в ЛИФ квантовые биения в результате интерференции между невырожденными зеемановскими состояниями (см. обзор /22/). В условиях, когда световое поле создает моменты φ_q^x различного ранга нижнего уровня и связывает их с поляризационными моментами f_q^k верхнего уровня, можно наблюдать в ЛИФ сигналы квантовых биений нижнего уровня на частоте $\omega = g\mu_0 g_a H/k$. Экспериментально наиболее доступным оказалось наблюдение резонанса биений (РБ) в нелинейном варианте, реализованное в /14, 16/ на $(6, 52)XO_9^{+} I^{30}Te_2$. Применялось гармоническое модулированное возбуждение $\Gamma_p = \Gamma_{p0} (1 - \varepsilon \sin 2\pi\nu t)$, где ν - частота модуляции, ε - ее глубина.

Приведем, следуя /16/, описание РБ с точностью до второго приближения, начиная с которого эффект РБ нижнего уровня проявляется в ЛИФ. При условии $\omega \ll \Gamma_k$ процесс в возбужденном состоянии можно принять стационарным, положив в (1а) $f_n^k = 0$. Чтобы выразить f_n^k в разложении (5), следует знать первое приближение $\varphi_q^x(t)$, аналогично сказанному в §3, которое на сей раз ищется как решение дифференциального уравнения

$$\frac{d\varphi_q^x(t)}{dt} = -\Gamma_{p0} (1 - \varepsilon \sin \omega_m t) A^{x, x0} \Phi_0^x n_{n^*} J^n -$$

$$- J_x \varphi_q^x(t) + i q \omega \varphi_q^x(t), \quad (10)$$

где $\omega_M = 2F$ - циклическая частота модуляции возбуждения. В (10) произведено суммирование по λ, λ' , и использованы свойства коэффициентов Клебша-Гордана при раскрытии в (16) тензорного произведения. Уравнение, совпадающее по форме с (10), решено в /20/. По аналогии получаем

$$\varphi_q^{(1)}(t) = -\Gamma_{p0} A^{x_0} \Phi_q^{x_0} n_{\alpha\beta} J^{\alpha\beta} \left\{ \frac{\gamma_{x_0} + iq\omega}{\gamma_{x_0}^2 + q^2\omega^2} - \right. \quad (11)$$

$$\left. - \varepsilon \frac{[(\gamma_{x_0} + iq\omega)^2 + \omega_M^2][(\gamma_{x_0} - iq\omega) \sin \omega_M t - \omega_M \cos \omega_M t]}{[\gamma_{x_0}^2 + (\omega_M - q\omega)^2][\gamma_{x_0}^2 + (\omega_M + q\omega)^2]} \right\}$$

Запишем \int_a^k ⁽²⁾, произведя усреднение по времени с учетом $\varepsilon^2 \sin^2 \omega_M t = \frac{1}{2} \varepsilon^2$:

$$\overline{\int_a^k} = -\frac{\Gamma_{p0}^2}{\Gamma_k - iQ\Omega} \sum_{\lambda, \lambda'}^{k, \lambda'} A^{x_0} \sum_{\lambda, \lambda'}^{k, \lambda'} C_{\lambda, \lambda'}^{k, \lambda'} \Phi_{\lambda}^x \Phi_{\lambda'}^{x'} B_{\lambda, \lambda'} n_{\alpha\beta} J^{\alpha\beta} \quad (12)$$

где

$$B_{\lambda, \lambda'} = \frac{\gamma_{x_0} + iq\omega}{\gamma_{x_0}^2 + q^2\omega^2} + \frac{1}{2} \varepsilon^2 \frac{[(\gamma_{x_0} + iq\omega)^2 + \omega_M^2](\gamma_{x_0} - iq\omega)}{[\gamma_{x_0}^2 + (\omega_M - q\omega)^2][\gamma_{x_0}^2 + (\omega_M + q\omega)^2]} \quad (13)$$

Из (12) и (13) следует, что, во-первых, РБ основного уровня a перенесен на уровень b в виде резонансного множителя $\gamma_{x_0}^2 + (\omega_M \pm q\omega)^2$ и становится наблюдаемым в ЛИЭ. Во-вторых, в отличие от линейного варианта РБ /20/ сигнал не исчезает при усреднении по времени, т.е. происходит "оптическое выпрямление". Более подробный по сравнению с /16/ расчет интенсивности $I_{\lambda, \lambda'}$, а также степеней поляризации и циркулярности и его применение для обработки сигнала

ла РБ приведен в статье А.Аболтиныча и Р.Фербера, публикуемой в настоящем сборнике (с.28).

Методически заманчиво наблюдать биения в кинетике переходного процесса ЛИФ, см. рис.46, область III, так как в этом случае ожидается проявление сигнала в области линейного отклика. Такие эксперименты проводятся нами в настоящее время.

7. Экспериментальные данные

Приведем сводку экспериментальных данных, которые впервые получены с применением оптической накачки и интерференции состояний в ЛГУ им. П.Стучки на Na_2, K_2, Te_2, Se_2 . Рассмотренные выше методы и экспериментальные величины, которые в них непосредственно определяются, обобщены в табл.1. Результаты, полученные при изучении основного электронного состояния, приведены в табл.2, возбужденного - в табл.3 и 4.

Табл.1 иллюстрирует материал данной статьи и не претендует на полноту изложения существующих методов. В частности, не обсуждаются пучковые эксперименты, рассмотрено в основном линейно поляризованное возбуждение и т.д. Литературные ссылки в табл.1 содержат также большинство известных нам работ других авторов по основному состоянию (нелинейные эффекты) и некоторые работы по возбужденному состоянию.

Нелинейные эффекты "включают" в ЛИФ основное состояние, следовательно, измеряемые сигналы могут служить целям определения его параметров. Из рассмотренного в §§2-5 материала следует, что связанность уравнений (16) для $\dot{\rho}_{22}^{xx}$ затрудняет раздельное определение γ_{22}^{xx} , поэтому в табл.1 фигурирует символ γ без указания ранга. Для возбужденного состояния, напротив, удобно раздельно определять скорости релаксации заселенности Γ_2 и выстраивания Γ_2 , а также их отношение выбором соответствующего эксперимента.

Измеренные значения констант скорости K и усреднен-



Методы оптической накачки димеров и
получаемые экспериментальные данные

Степень накачки	Магнит. поле	Измеряемый сигнал в ЛИФ	Определяемая величина	Цитируемые работы
Стационарное возбуждение				
Нелин.	$H=0$	Насыщение $I \bar{I}_{\rho}^{\nu}(\Gamma/\delta)$ Деполаризация $\rho(\Gamma/\delta)$	Γ/δ	/1-4, 6, 7, 25 28, 29, 30 /
Лин.	$H=0$	Столкн. тушение $I^{\nu}(\Gamma_0/\Gamma_{\text{ст}})$ Столкн. деполар. $\rho(\Gamma_2/\Gamma_0)$	$\Gamma_0/\Gamma_{\text{ст}}$ Γ_2/Γ_0	/19, 31/ /17, 19/
Нелин.	$H \neq 0$	Эф. Ханле основного состояния $\rho(\omega/\delta)$	g_a/δ	/5, 8, 9, 13 15, 19, 28 /
Лин.	$H \neq 0$	Эф. Ханле возб. состояния $\rho(\Omega/\Gamma_2)$	g_b/Γ_2	/8, 9, 19, 32, 33/
Модулированное возбуждение				
Нелин.	$H=0$	Переходный процесс нижнего ур. $I \bar{I}_{\rho}^{\nu}(t)$	δ	/10-12, 17, 18, 27/
Лин.	$H=0$	Переходный процесс верхнего ур. $I^{\nu}(t)$	Γ_0	/19, 34/
Нелин.	$H \neq 0$	Резонанс биений $\rho(\nu), C(\nu)$	g_a	/14, 16/

ных по Максвеллу эффективных сечений релаксации при столкновениях с частицей-партнером A' приведены в табл. 2 для ряда n^2, n^2, J^2 -уровней основного электронного состояния $K_2, Na_2, ^{130}Te_2$. Указаны методы измерения: "Абс. инт." - измерение степени поляризации $\rho(\Gamma/\delta)$ - см. §3 - плюс независимое определение Γ по абсолютной интенсивности ЛИФ; "Ханле" - эффект Ханле нижнего уровня (нелинейный эффект) -

см. §4 ; "Кинетика" - измерение кинетики переходного процесса нижнего уровня - см. §5. С применением резонанса биемний уровня ν', J' - см. §6 - определен фактор Ланде для $(6, 53)XO_9^+ I3C_{Te_2}$, равный $g_a = (1,68 \pm 0,05) \cdot 10^{-4} / 16$. В последнем столбце табл. 2 указаны значения эффективных сечений захвата σ_0 , рассчитанные согласно /3/.

Обратимся теперь к приведенной в табл. 3 и 4 информации, относящейся к возбужденным электронным состояниям, которую позволили получить описанные в §§3-5 методы. Для это следует "выключить" основное состояние, что достигается в пределе слабого возбуждения $\Gamma_p \ll J'$ при "линейном отклике" молекулярного ансамбля. Выбор подходящего метода из табл. I позволяет определить скорость релаксации заселенностей Γ_0 , выстраивания Γ_2 и их отношение Γ_2/Γ_0 , а также соответствующие эффективные сечения σ_0, σ_2 и отношение σ_2/σ_0 .

Будем вновь следовать порядку изложения материала в табл. I. Измерение столкновительного тушения при стационарном возбуждении по уменьшению интенсивности I^ν ЛДФ с помощью поляризатора, помещенного перед монохроматором под углом $\nu = \arccos 1/\sqrt{3}$ к вектору E возбуждающего света, дает возможность определить отношение Γ_0 к скорости спонтанного распада уровня Γ_{sp} . При таком наблюдении выстраивание не регистрируется из-за $\Phi_0^2(\vec{c}_\nu) = 0$. Зависимость I^ν от концентрации N удобно изображать (см. рис. 5 и 6) в виде отношения

$$I^\nu(0) / I^\nu(N) = 1 + \Gamma_0 / \Gamma_{sp} = 1 + \sigma_0 N \bar{n} / \Gamma_{sp}. \quad (14)$$

Если известно время спонтанного распада, то наклон прямых на рис. 5а и 6а позволяет определить эффективные сечения дезактивации уровня ν', J' - см. /17, 19/, - приведенные в табл. 3 (метод "тушение").

Измерение столкновительной деполаризации позволяет весьма точно измерить отношение Γ_2/Γ_0 , используя выражение (6) для Q -переходов. Соответствующее выражение для переходов P и R -типа, т.е. при $J' = J' \pm 1$, имеет

Константы скорости и эффективные сечения релаксации уровней σ^* , J^* основного электронного состояния димеров

Димер, состояние	Лазерная линия, нм	ν^* , J^*	Партнер соуд.	$k \cdot 10^{-9}, \text{см}^3 \text{с}^{-1}$	$\sigma \cdot 10^{-14}, \text{см}^2$	Метод	Работы	$\sigma_2 \cdot 10^{-14}, \text{см}^2$
K_2 $X^1\Sigma_g^+$	632,8	1,72	Ne	$0,83 \pm 0,08$	$0,52 \pm 0,05$	Кинетика	/17/	0,52
	632,8	1,72	Ne	$0,79 \pm 0,15$	$1,06 \pm 0,18$	Кинетика	/17/	0,65
	632,8	1,72	Ar	$0,90 \pm 0,08$	$1,54 \pm 0,12$	Кинетика	/12, 17/	1,02
	632,8	1,72	Kr	$0,75 \pm 0,04$	$1,59 \pm 0,07$	Кинетика	/12, 17/	1,17
	632,8	1,72	Xe	$0,68 \pm 0,08$	$1,55 \pm 0,12$	Кинетика	/17/	1,36
	632,8	1,72	K	$2,3 \pm 0,4$	$3,3 \pm 0,5$	Кинетика	/10/	2,6
	632,8	1,72	K	$1,8 \pm 0,6$	$2,5 \pm 0,5$	Ханле	/8, 9/	2,5
632,8	1,72	K	$1,4 \pm 0,7$	2 ± 1	Абс. инт.	/3, 6/	2,6	
Na_2 $X^1\Sigma_g^+$	488,0	3,43	Na	$1,1 \pm 0,4$	$1,1 \pm 0,4$	Абс. инт.	/7/	1,6
	488,0	2,99	Na	$1,2 \pm 0,5$	$1,2 \pm 0,5$	Абс. инт.	/7/	1,6
	488,0	2,99	Na	$1,7 \pm 0,3$	$2,0 \pm 0,4$	Ханле	/7/	1,6
	514,5	14,49	Na	$1,8 \pm 0,8$	$1,8 \pm 0,8$	Абс. инт.	/7/	1,6
$^{130}\text{Te}_2$ XO_g^+	514,5	6,52	$^{130}\text{Te}_2$	$1,4 \pm 0,3$	4 ± 1	Ханле	/15/	-
	514,5	6,52	Xe	$1,0 \pm 0,1$	$2,8 \pm 0,3$	Ханле	/15/	-

Константы скорости и эффективные сечения релаксации уровней ν', J' возбужденных электронных состояний димеров

Димер	Лазерная линия, нм	Состояние	ν', J'	Партнер соуд.	$k \cdot 10^{-9}, \text{см}^3 \text{с}^{-1}$	$\sigma \cdot 10^{-14}, \text{см}^2$	Метод	Лит. ссылка
$^{130}\text{Te}_2$	514,5	AO_u^+	11,53	$^{130}\text{Te}_2$	$0,53 \pm 0,10$	$1,5 \pm 0,3$	Кинетика	/19/
	514,5	AO_u^+	11,53	$^{130}\text{Te}_2$	$0,69 \pm 0,13$	$2,1 \pm 0,4$	Ханле	/19/
	514,5	AO_u^+	11,53	He	$0,53 \pm 0,09$	$0,30 \pm 0,05$	Кинетика	/19/
	514,5	AO_u^+	11,53	He	$0,56 \pm 0,17$	$0,3 \pm 0,1$	Тушение	/19/
	514,5	AO_u^+	11,53	Xe	$0,57 \pm 0,08$	$1,4 \pm 0,2$	Кинетика	/19/
	514,5	AO_u^+	11,53	Xe	$0,52 \pm 0,08$	$1,3 \pm 0,2$	Ханле	/19/
	514,5	AO_u^+	11,53	Xe	$0,41 \pm 0,08$	$1,0 \pm 0,2$	Тушение	/19/
	488,0	BO_u^+	3,25I	$^{130}\text{Te}_2$	$0,71 \pm 0,11$	$2,1 \pm 0,3$	Ханле	/19/
	488,0	BO_u^+	3,25I	Xe	$0,33 \pm 0,08$	$0,8 \pm 0,2$	Ханле	/19/
	488,0	BO_u^+	3,25I	Xe	$0,38 \pm 0,08$	$0,7 \pm 0,2$	Тушение	/19/
	496,5	BO_u^+	0,107	He	$0,75 \pm 0,18$	$0,4 \pm 0,1$	Тушение	/19/
	496,5	BO_u^+	0,107	Xe	$0,41 \pm 0,08$	$1,0 \pm 0,2$	Тушение	/19/
	$^{80}\text{Se}_2$	472,7	BI_u	0,105	Ar	$0,2 \pm 0,02$	$0,30 \pm 0,02$	Тушение
632,8		$\text{B}^1\Pi_u$	8,72	Ar	$0,41 \pm 0,06$	$0,7 \pm 0,1$	Тушение	/17/

вид

$$\rho = \frac{3}{20 \Gamma_2 / \Gamma_0 + 1} \quad (15)$$

С учетом (14) можно перейти от Γ_2 / Γ_0 к отношению сечений σ_2 / σ_0 . Для Q -переходов имеем

$$\sigma_2 / \sigma_0 = \frac{(\frac{3}{5} \rho^{-1} - \frac{1}{3}) I^{\nu}(0) / I^{\nu}(N) - 1}{I^{\nu}(0) / I^{\nu}(N) - 1}, \quad (16)$$

а для P и R переходов

$$\sigma_2 / \sigma_0 = \frac{(\frac{3}{20} \rho^{-1} - \frac{1}{20}) I^{\nu}(0) / I^{\nu}(N) - 1}{I^{\nu}(0) / I^{\nu}(N) - 1}. \quad (17)$$

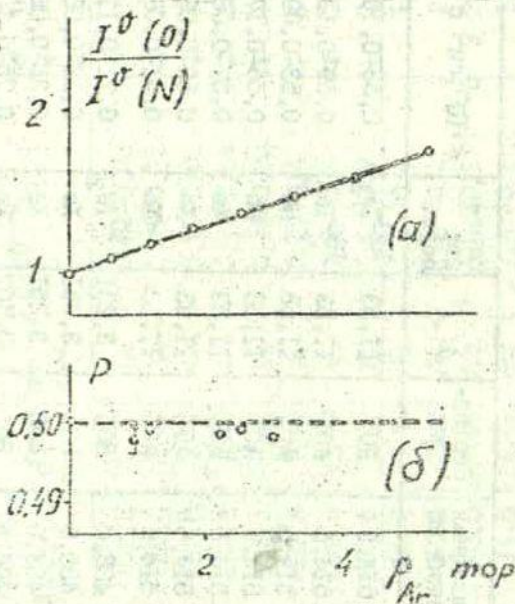


Рис. 5. Тушение ЛИФ с уровня (8,72) $V^I \Pi_{\alpha} K_2$ аргоном (а); зависимость степени поляризации от концентрации Ar (б) / I7/. Переход типа $Q1$, $Q1$.

Измерение для случая Q - переходов (рис. 5б) дают отношение сечений $\sigma_2/\sigma_0 = 1,03 \pm 0,01$ в смеси $K_2 + Ar$, причем в действительности оно может быть еще ближе к единице из-за возможного проникновения через монохроматор сателлитных линий /17/. Измерения для R , P - перехода в $^{130}Te_2 + Xe$ приведены на рис. 6б /19/. Они выполнены с несколько большей погрешностью и приводят к равенству единице отношения σ_2/σ_0 с точностью до $\pm 0,07$. Данные, приведенные на рис. 5 и 6, демонстрируют очень малую эффективность чисто деполяризующих соударений по сравнению с тушащими.

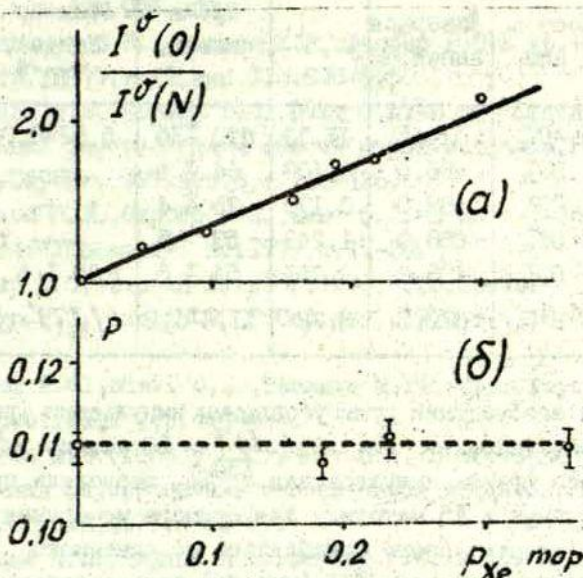


Рис. 6 Тушение ЛИФ с уровня (II, 53) $AO_u^{130}Te_2$ ксеноном (а); зависимость степени поляризации от давления ксенона (б). Переход типа $R1$, $P1$ /19/.

Эффект Ханле в линейном варианте позволяет определить g_b/Γ_2 . Если известно $\Gamma_2(N=0) = \Gamma_{ст}$, то кон-

центрационная зависимость ширины контура дает сечения σ_2 , приведенные в табл.3 (метод Ханле). Знание фактора Ланде позволило определить время жизни (например, для $V^I\Pi_u K_2$ принято $g_2 = [J'(J'+1)]^{-1}$), и, наоборот, независимое определение времени жизни позволило получить неизвестные факторы Ланде А и В состояний $^{130}\text{Te}_2$ (табл.4).

Т а б л и ц а 4

Времена жизни и факторы Ланде $^{130}\text{Te}_2$

Димер	Состояние	Лазерная линия, нм	J', J'	Время жизни, нс	(Фактор Ланде), 10^{-4}	Лит. ссылка
$^{130}\text{Te}_2$	AO_u^+	514,5	II, 53	670 ± 30	$0,52 \pm 0,06$	/19/
	BO_u^+	496,5	0,107	64 ± 5	—	/19/
	VO_u^+	488,0	0,179	75 ± 4	—	/19/
	VO_u^+	488,0	1,243	50 ± 5	—	/19/
	VO_u^+	488,0	3,251	54 ± 5	30 ± 6	/19/
K_2	$V^I\Pi_u$	632,8	8,72	$11,6 \pm 1,2$	$1/J'(J'+1)$	/8,9/

При возбуждении прямоугольными импульсами (рис.4) выполнимость условия $\Gamma_{ch} \leq (\Delta t)^{-1} \sim 50$ нс, где Δt - ширина заднего фронта импульса, для $^{130}\text{Te}_2$ позволила применить рассмотренную в §5 методику для прямого измерения времени жизни. Мощность лазера ослаблялась до линейного отклика ансамбля, когда область III (рис.4б) горизонтальна. Измеренные времена жизни /19/ приведены в табл.4. Концентрационные зависимости экспонент позволяют определить сечения соответствующего столкновительного процесса, приведенные в табл.3 (метод "Кинетика"). Здесь снова нужно отметить, что установка поляризатора под углом $\delta = \arccos 1/\sqrt{3}$ в канале регистрации обеспечивает измерение сечения распада заселенности σ_2 , однако в большинстве экспериментов, результаты которых приведены в табл.3, поляририд не ставился.

Сечения, измеренные различными методами, совпадают в пределах ошибок (см. табл. 3). Однако для прецизионного сравнения сечений распада выстраивания и заселенности из-за крайне малого их различия в случае двухатомных молекул следует использовать определение их отношения по (16), (17).

С п и с о к л и т е р а т у р ы

1. Таманис М. Я., Фербер Р. С., Шмит О. А. - Изв. АН ЛатвССР. Сер физ. и техн. наук, 1975, № 4, с. 33-35.
2. Таманис М. Я., Фербер Р. С., Шмит О. А. - Опт. и спектр., 1976, т. 41, вып. 6, с. 925-928.
3. Грушевский В. Б., Таманис М. Я., Фербер Р. С. и др. - Опт. и спектр., 1977, т. 42, вып. 5, с. 993-995.
4. Таманис М. Я., Фербер Р. С., Шмит О. А. - В кн.: Сенсibilизированная флуоресценция смесей паров металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1977, вып. 6, с. 116-136.
5. Таманис М. Я., Фербер Р. С., Шмит О. А. - В кн.: Теоретическая спектроскопия. М., 1977, с. 17-20.
6. Фербер Р. С. - Изв. АН ЛатвССР, 1978, № 3, с. 85-99.
7. Фербер Р. С. - Изв. АН СССР. Сер. физ., 1979, т. 43, № 2, с. 419-423.
8. Ferber R. S., Shmit O. A., Tamanis M. Ya. - Chem. Phys. Lett., 1979, vol. 61, N 3, p. 441-444.
9. Таманис М. Я., Фербер Р. С., Шмит О. А. - В кн.: Сенсibilизированная флуоресценция смесей паров металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1979, с. 53-67.
10. Аузиньш М. П., Пирагс И. Я., Фербер Р. С. и др. - Письма в ЖЭТФ, 1980, т. 31, вып. 10, с. 589-592.
11. Суворов А. Е., Аузиньш М. П., Пирагс И. Я. и др. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов / Под ред. Э. К. Краулинь. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1981, с. 42-49.
12. Аузиньш М. П., Пирагс И. Я., Фербер Р. С. и др. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов / Под ред. Э. К. Краулинь. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1981, с. 50-56.
13. Таманис М. Я., Шмит О. А. - В кн.: Процессы переноса энер -

- гии в парах металлов /Под ред. Э.К.Краулинь .Рига:ЛГУ им.П.Стучки, 1981, с.80-83.
14. Ferber R.S., Shmit O.A., Tamanis M.Ya. - In: Abstracts of European Conference on Atom. Phys. April 6-10, Heidelberg, 1981, p. 321-322.
 15. Таманис М.Я., Фербер Р.С., Шмит О.А. - Опт. и спектр., 1982, т. 53, вып. 4, с. 755-758.
 16. Ferber R.S., Okunevich A.I., Shmit O.A., et al. - Chem. Phys. Lett., 1982, vol. 90, p. 476-480.
 17. Auzin'sh M.P., Ferber R.S., Pirags I.Ya. - J. Phys. B: At. Mol. Phys., 1982, vol. , p.
 18. Аузиньш М.П., Пирагс И.Я., Фербер Р.С. и др. - В кн.: Тез. докл. VIII Всесоюз. конф. по физике электронных и атомных столкновений. Ленинград, 22 сент. - 2 окт. Л., 1981, с. 121.
 19. Ferber R.S., Tamanis M.Ya., Shmit O.A. - Chem. Phys. Lett., 1982, vol. , p.
 20. Дьяконов М.И. - ЖЭТФ, 1964, т. 47, вып. 6, с. 2213-2221.
 21. Чайка М.П. Интерференция вырожденных атомных состояний. Л.: ЛГУ, 1975. 191 с.
 22. Александров Е.Б. - УФН, 1972, т. 107, вып. 4, с. 592-622.
 23. Котликов Е.Н., Кондратьева В.А. - Опт. и спектр., 1980, т. 48, вып. 4, с. 667-674.
 24. Окуневиц А.И. - Опт. и спектр., 1981, т. 50, вып. 3, с. 443 - 449.
 25. Drullinger R.E., Zare R.N. - J. Chem. Phys., 1969, vol. 51, N 12, p. 5532-5542; 1973, vol. 59, N 8, p. 4225-4233.
 26. Bergmann K., Engelhardt R., Hefter U. et al. - Phys. Rev. Lett., 1978, vol. 40, N 22, p. 1446-1450.
 27. König F., Weber H.G. - Chem. Phys., 1980, vol. 45, N 1, p. 91-100.
 28. Ducloy M. - J. Phys. B: At. Mol. Phys., 1976, vol. 9, N 3, p. 357-381.
 29. Clark R., McCaffery A.J. - Mol. Phys., 1978, vol. 35, N 3, p. 617-637.
 30. Ottinger Ch., Schröder M. - J. Phys. B: At. Mol. Phys., 1979 ,

vol.12, N 21, p.3533-3557.

31. Steinfeld J.L., Klempéer W. - J. Chem. Phys., 1965, vol.42, N 10, p.3475-3497.
32. Mc Clintock M., Demtröder W., Zaré R.N. - J. Chem. Phys., 1969, vol.51, N 12, p.5509-5521.
33. Котликов Е.Н. - Опт. и спектр., 1976, т.41, вып. 4, с.730-735.
34. Demtröder W., Stetzenbach W., Stock M. et al. - J. Mol. Spectrosc., 1976, vol.61, N 11, p.382-394.

А. Р. Аболтиньш, Р. С. Фербер
ЛГУ им. П. Стучки
(Рига)

ПРОЯВЛЕНИЕ ЭФФЕКТА РЕЗОНАНСА БИЕНИЙ ОСНОВНОГО СОСТОЯНИЯ ДВУХАТОМНЫХ МОЛЕКУЛ

В статье /1/ одного из авторов, помещенной в настоящем сборнике (с. 3), рассмотрено возникновение и разрушение поляризационных моментов при оптической накачке двухатомных молекул, в частности резонанс квантовых биений между магнитными подуровнями в основном электронном состоянии. Настоящая публикация содержит более детальное рассмотрение явления. В изложении непосредственно используется ряд формул и рисунков из /1/.

Резонанс квантовых биений (РБ) при модулированной по амплитуде скорости оптического возбуждения $\Gamma_D = \Gamma_{D0}(1 - \varepsilon \sin \omega_M t)$, где ω_M — частота модуляции, ε — ее амплитуда, относится к группе явлений интерференции невырожденных состояний /2/. В обычном варианте линейного отклика ансамбля частиц при слабом световом поле эффект проявляется как резонансное возрастание амплитуды модуляции поглощения или флуоресценции при совпадении энергии $\hbar \omega_M$ и энергии расщепления интерферирующих подуровней состояния, в частности, во внешнем стационарном магнитном поле. Явление впервые наблюдалось на атомах в /3/. Для димеров РБ наблюдался в /4/ на ровибронном уровне ($v' = 0, J' = 105$) возбужденного V/u состояния $^{60}\text{Se}_2$. Интерес к возможности распространения явления РБ в нелинейном варианте также на основное состояние двухатомных молекул связан с открывающейся перспективой прямого измерения магнитных моментов отдельных колебательно-вращательных уровней (v', J') X-состояния. Такая информация для димеров практически отсутствует. Лишь для груп-

пы H_2 в работе Н.Рамзая и др. /5/ методом магнитного резонанса в молекулярных пучках измерены факторы Ланде $X^I \Sigma_g^+$ - состояния, однако без селекции по v'' , J'' . Магнитные моменты в $I \Sigma$ -состоянии, обусловленные вращением молекулы, имеют очень малые значения ($\sim 10^{-3} - 10^{-5}$ магнетона Бора) и представляют трудности также для теоретического расчета.

Эффект РБ основного электронного состояния димеров зарегистрирован в /6,7/ на ($v''=6$, $J''=52$) XO_g^+ $^{130}Te_2$ при интерференции зеемановских подуровней с $|\Delta M_{J''}|=1$ и 2. Ar^+ -лазер 514,5 нм возбуждал переход $(6,52)XO_g^+ \rightarrow (11,53)AO_g^+$ в условиях нелинейной оптической накачки, создавая поляризационные моменты выстраивания и ориентации нижнего уровня и связывая их с моментами верхнего состояния. Частота модуляции $\omega_M / 2\pi$ была в пределах 0,15-0,55 МГц. Изменялись изменения в степени линейной поляризации либо циркулярности лазерно-индуцированной флуоресценции при сканировании ω_M в присутствии внешнего постоянного магнитного поля \vec{H} , перпендикулярного вектору \vec{E} возбуждающего света и направлению возбуждения.

Описание явления в аппарате поляризационных моментов приведено в /7/. В настоящей публикации приводится более детальный анализ этого вопроса, в частности, рассмотрен случай, когда скорость распада возбужденного состояния одного порядка с ω_M , включены вынужденные переходы, исследован сдвиг положения резонанса из-за влияния эффекта Ханле возбужденного состояния, приводятся выражения, описывающие сигнал РБ в степени поляризации флуоресценции, также в случае Q -переходов, т.е. когда $J'' = J''$.

Изложенное ниже опирается на материал статьи /1, §2,6/, публикуемой в настоящем сборнике. Обратимся к приведенной там системе уравнений (I) для поляризационных моментов возбужденного состояния f_a^k и основного состояния φ_g^x . Схема оптической накачки приведена в /1/ на рис. I. Решение системы (I), приведенной в /1/, будем искать в виде разложения в ряд, см. (5) из /1/, но без упрощающего предположения $\frac{df_a^k}{dt} = 0$, принятого для (Ia) в /1/, требующего $\Gamma_k \gg \omega$. Такое

рассмотрение полезно, в частности, для реализованных в /6, 7/ А—Х переходов в Te_2 ввиду $\Gamma_K = \Gamma = 1,5 \cdot 10^6 \text{с}^{-1}$, $\delta_x = \delta \sim (0,2-0,5) \cdot 10^6 \text{с}^{-1}$, $\omega \sim 10^6 \text{с}^{-1}$. Включены также обратные спонтанные переходы со скоростью Γ_{ba} . Так как эксперименты /6, 7/ проводились в стационарном режиме при усреднении по промежутку времени, значительно превышающему период модуляции, ограничимся выражением для усредненных по времени значений $f_a^{(2)K}$, знание которых позволяет рассчитать интенсивность флуоресценции по /1/, (3). Выражение с точностью до второго порядка для $f_a^{(2)K}$ без учета в системе уравнений /1/, (1) вынужденных переходов имеет следующий вид:

$$f_a^{(2)K} = - \frac{\Gamma_{a0}^2 n_{v^*} J^*}{\Gamma_K - iQ\Omega} \sum_{\lambda\mu}^K F^{\lambda\mu} \sum_{\xi\eta} C_{\lambda\xi}^{\mu\eta} \phi_{\xi}^{\lambda}(\vec{e}) S_{\eta}^{\mu} \left\{ \frac{1}{\delta_x - iQ\omega} + \frac{1}{\Gamma_K - iQ\Omega} + \frac{\Gamma_{J^*} J^*}{(\delta_x - iQ\omega)(\Gamma_K - iQ\Omega)} + \frac{\varepsilon^2 (\delta_x - iQ\omega)}{2[(\delta_x - iQ\omega)^2 + \omega_N^2]} - \frac{\varepsilon^2 (\Gamma_K - iQ\Omega)}{2[(\Gamma_K - iQ\Omega)^2 + \omega_N^2]} + \frac{\varepsilon^2 \Gamma_{J^*} J^* [(\delta_x - iQ\omega)(\Gamma_K - iQ\Omega) - \omega_N^2]}{2[(\delta_x - iQ\omega)^2 + \omega_N^2][(\Gamma_K - iQ\Omega)^2 + \omega_N^2]} \right\}, \quad (1)$$

где $S_{\eta}^{\mu} = \sum_{\lambda\xi} C_{\lambda\xi}^{\mu\eta} \phi_{\xi}^{\lambda}(\vec{e})$,

а смысл остальных обозначений ясен из /1/, (1). Первые два члена в фигурных скобках описывают эффект Ханле нижнего и верхнего уровня, третий член—"перекрестный" эффект обоих уровней, давший вклад порядка отношения скорости обратных спонтанных переходов $\Gamma_{J^*} J^*$ к Γ_K . Следующие члены описывают эффект РБ: четвертый член—РБ нижнего уровня (при $\omega_N = \omega$), пятый—РБ верхнего уровня (при $\omega_N = \Omega$), шестой—дающий вклад порядка $\Gamma_{J^*} J^* / \Gamma_K$ "перекрестный" эффект РБ верхнего и нижнего уровней.

Для учета вынужденного излучения следует к определяемому из (1) значению $f_a^{(2)K}$ добавить член $(\Delta f_a^{(2)K})_{\text{ог}}$, имеющий вид

$$\overline{\Delta f_{0 \text{ инт}}^{(k)}} = \frac{\Gamma_{P0}^2 \pi \omega^2 J^2}{\Gamma_K - iQ\Omega} \sum_{Xx} K_F^{Xx} \sum_{\substack{Xq \\ Xq'}} C_{Xq}^{KQ} \phi_{Xq}^{X'}(\bar{e}) \sum_{X'x'} K_F^{X'x'} x$$

$$\left. \begin{aligned} & x \sum_{\substack{Xq \\ Xq'}} C_{Xq}^{KQ} \phi_{Xq}^{X'}(\bar{e}) S_{Xq}^{X'} \left\{ \frac{\Gamma_{P0}}{(\Gamma_K - iq'\Omega)(\gamma_{Xq} - iq\omega)} + \frac{\varepsilon^2 \Gamma_{P0} (\Gamma_K - iq'\Omega)}{2[(\Gamma_K - iq'\Omega)^2 + \omega_N^2](\gamma_{Xq} - iq\omega)} \right. \\ & \left. - \frac{\varepsilon^2 \Gamma_{P0} (\gamma_{Xq} - iq\omega)}{2(\Gamma_K - iq'\Omega)[(\gamma_{Xq} - iq\omega)^2 + \omega_N^2]} - \frac{\varepsilon^2 \Gamma_{P0} [(\gamma_{Xq} - iq\omega)(\Gamma_K - iq'\Omega) - \omega_N^2]}{2[(\Gamma_K - iq'\Omega)^2 + \omega_N^2][(\gamma_{Xq} - iq\omega)^2 + \omega_N^2]} \right\}. \quad (2) \end{aligned} \right\}$$

Из (2) видно, что порядок величины вклада вынужденного излучения определяется множителем порядка Γ_{P0} / Γ_K . Добавляются только "перекрестные" члены, содержащие все возможные комбинации произведений сигналов Ханле и РБ верхнего и нижнего уровней.

Перейдем к расчету экспериментально наблюдаемых сигналов. Ввиду малого относительного значения сигнала РБ на фоне неизбежного дрейфа интенсивности флуоресценции оказалось удобным измерять нормированную величину, например, степень поляризации либо циркулярности, тем более, что это позволило почти без изменений использовать установку, примененную для исследования эффекта Ханле [8]. Для получения обозримых аналитических выражений ограничимся приближением $\frac{dI_0}{dt} = 0$, пренебрегая также вынужденными и обратными спонтанными переходами. Для расчетов нужно знать входящие в (1) коэффициенты K_F^{Xx} , сведенные в табл. I. При их вычислении принято $J', J'' \rightarrow \infty$, что позволило использовать асимптотические выражения [1], (2).

Линейно поляризованное возбуждение; P, R переходы

Рассмотрим вначале случай линейно поляризованного возбуждения. Пусть возбуждающий луч направлен вдоль Ox с электрическим вектором $\vec{E} \parallel Oy$, магнитное поле \vec{H} (ось

Значения K_F^{Xx} при $J'J'' \rightarrow \infty$

K_F^{Xx}	$J' - J'' - 1$	$J' - J''$	$J' - J'' + 1$
0F00	$-1/\sqrt{3}$	$-1/\sqrt{3}$	$-1/\sqrt{3}$
0F11	$3/\sqrt{2}$	0	$-3/\sqrt{2}$
1F01	$-1/\sqrt{3}$	$-1/\sqrt{3}$	$-1/\sqrt{3}$
1F10	$-1/\sqrt{6}$	0	$1/\sqrt{6}$
0F22	$-5/\sqrt{6}$	$+10/\sqrt{6}$	$-5/\sqrt{6}$
1F12	$\sqrt{3}/3$	0	$-\sqrt{3}/3$
1F21	$1/\sqrt{3}$	$-2/\sqrt{3}$	$1/\sqrt{3}$
2F02	$-1/\sqrt{3}$	$-1/\sqrt{3}$	$-1/\sqrt{3}$
2F11	$-3/5$	0	$3/5$
2F20	$-1/\sqrt{30}$	$2/\sqrt{30}$	$-1/\sqrt{30}$
2F22	$5/\sqrt{7 \cdot 15}$	$-10/\sqrt{7 \cdot 15}$	$5/\sqrt{7 \cdot 15}$

квантования) и наблюдение - вдоль Oz . Значения функции Дьяконова Φ_j^X /9/ есть $\Phi_0^0 = -1/\sqrt{3}$, $\Phi_0^2 = -1/\sqrt{30}$, $\Phi_{22}^2 = -1/2\sqrt{5}$ для указанной геометрии возбуждения, а также при регистрации интенсивности излучения I^{σ_y} и $1/2\sqrt{5}$ при регистрации I^{σ_x} . Используя (1) и формулу /1/, (3), получаем выражение для степени линейной поляризации $\rho = \frac{I^{\sigma_y} - I^{\sigma_x}}{I^{\sigma_y} + I^{\sigma_x}}$ при P, R - переходах:

$$\rho_{P,R}^{(\sigma)} = \frac{1}{1 + 4 \frac{\Omega^2}{\Gamma_2^2}} \cdot \frac{3}{1 + 20 \frac{\Gamma_2}{\Gamma_0}} \left\{ 1 + \frac{3\Gamma_{P0} \left[\left(9 \frac{\sqrt{2}}{\Gamma_0} + 3 \right) D_{20} - \left(33 \frac{\sqrt{2}}{\Gamma_0} + 3 \right) D_{22} + \left(160 \frac{\sqrt{2}}{\Gamma_0} + 8 \right) E_{22} \right]}{21 \left(20 \frac{\sqrt{2}}{\Gamma_0} + 1 \right) - \Gamma_{P0} \left[\left(140 \frac{\sqrt{2}}{\Gamma_0} + 7 \right) D_{00} + \left(7 \frac{\sqrt{2}}{\Gamma_0} + 8 \right) D_{20} + \left(21 \frac{\sqrt{2}}{\Gamma_0} - 3 \right) D_{22} \right]} \right\}^{(3)}$$

где введены обозначения

$$D_{xq} = \frac{1}{2}(V_{xq} + V_{x-q}), \quad (4)$$

$$E_{xq} = \frac{\Omega}{2q i \Gamma_2} (V_{xq} - V_{x-q}), \quad (5)$$

а вид V_{xq} приведен в /1/, (13). Удобство линейных комбинаций (4) и (5) в том, что они позволяют перейти к действительным выражениям и положительным значениям q .

Если принять равенство скоростей распада выстраивания и заселенности $\Gamma_2 = \Gamma_0$ для возбужденного состояния, что представляется весьма характерным для димеров, см. /1/, рис. 5, 6, то выражение (3) упрощается

$$P_{P,R}^{(2)} = \frac{1}{7} \frac{1}{(1 + 4 \frac{\Omega^2}{\Gamma_2^2})} \left[1 + \frac{12 \Gamma_{P0} (D_{20} - 3D_{22} + 14E_{22})}{147 - \Gamma_{P0} (49D_{00} + 5D_{20} + 6D_{22})} \right]. \quad (3')$$

Выражения (3) и (3)' записаны в виде суммы двух слагаемых. Первое слагаемое рассчитано с точностью до первого приближения по Γ_{P0}/γ_x , а второе - включает нелинейные эффекты в следующем приближении: множитель $1/7$, выделенный в (3)', соответствует максимальному значению степени поляризации при P, R - переходах в случае предельно слабого возбуждения. Следующий множитель отражает обычный линейный эффект Ханле возбужденного уровня. Второе слагаемое в (3), (3)' содержит включенный в V_{xq} член $\sim [\gamma_x^e + (\omega_H - q\omega)^2]^{-1/2}$, описывающий РБ нижнего уровня при $|q|=2$, $\omega_H = 2\omega = 2\gamma_{P0} g_a H/\kappa$, где g_a - фактор Ланде нижнего уровня.

Второе приближение (3) является весьма грубым. Представление о погрешности приближения дает приведенное на рис. I сравнение с точным классическим расчетом в отсутствии модуляции, т.е. $\mathcal{E} = 0$, $\omega_H = 0$, который возможен в двух предельных случаях: либо без магнитного поля, т.е. $H=0$, $\omega = \Omega = 0$ - см. рис. Ia, - либо при условии достаточно большого

поля, приводящего к $\omega \gg \gamma_x$, полагая, однако, $\Omega = 0$ (т.е. в пренебрежении магнетизмом верхнего уровня) - см. рис. 1б. Естественно, следует также принять, что скорость релаксации $\gamma_x = \gamma$ не зависит от ранга релаксирующего поляризованного момента. Соответствующие выражения для $P_{PR}^{(2)}$ получаются подстановкой перечисленных условий в (3) (с учетом (4), (5), а также /1/, (13)) и имеют совсем простой вид:

$$P_{PR}^{(2)} / \omega = \Omega = 0 = \frac{1}{7} \left(1 - \frac{3\Gamma_p / \gamma}{49 - 20\Gamma_p / \gamma} \right); \quad (6)$$

$$P_{PR}^{(2)} / \omega \gg \gamma, \Omega = 0 = \frac{1}{7} \left(1 + \frac{4\Gamma_p / \gamma^2}{49 - 18\Gamma_p / \gamma} \right). \quad (7)$$

Расчеты по классической модели осциллирующих диполей приводят к выражениям /10/:

$$P_{PR} / \omega = 0 = \frac{(3b^2 - 4b + b^{-4}) \operatorname{arctg}(b^{-4}) - 3b^2 + 3}{(b^3 - 4b + 3b^{-4}) \operatorname{arctg}(b^{-4}) - b^2 + 11/3}, \quad (8)$$

где $b^2 = 1 + \gamma / \Gamma_p$, и

$$P_{PR} / \omega \gg \gamma = \frac{(a^2 + 2a + a^{-4}) \operatorname{arctg}(a^{-4}) - a^2 - 5/3}{(2a^3 - 4a - 2a^{-4}) \operatorname{arctg}(a^{-4}) - 2a^2 + 14/3}, \quad (9)$$

где $a^2 = \frac{4 + \Gamma_p / \gamma}{\Gamma_p / \gamma}$.

Интересно, что значения степени поляризации при $\omega \gg \gamma$ превышают предельное для случая слабого возбуждения значение $1/7$.

На рис. 2 приведены рассчитанные по (5) сигналы РВ вблизи резонанса $\omega_M = 2\omega$ в предположении $\Omega = 0$, т.е. без учета эффекта Ханле верхнего уровня. Влияние последнего на форму и положение резонанса демонстрирует рис. 3, где для наглядности сравнения показаны изменения степени поляризации $\Delta P_{PR}^{(2)}$ относительно значения $P_{PR}^{(2)}(\omega_M = \omega)$ в

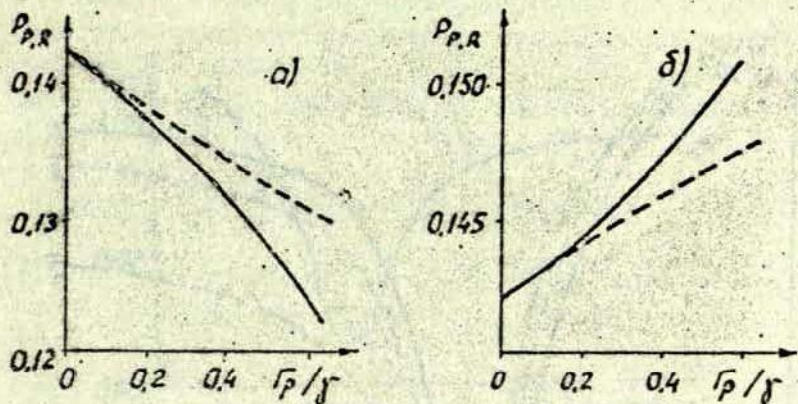


Рис. 1 Сравнение результатов расчета $P_{p,q}^{(2)}$ по (6), (7) с результатами классического расчета (пунктир) по (8), (9).
 (а) - для $\omega = 0$, (б) - для $\omega \gg \delta$.

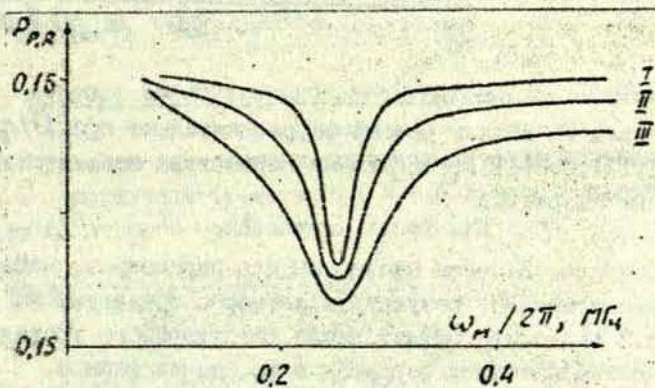


Рис. 2 Расчет сигнала РБ по (3)' при изменении частоты модуляции ω_m , принимая $\omega/2\pi = 0,125$ МГц, $\Omega = 0$, $\varepsilon = 0,7$: I - $\Gamma_{p0} = \delta = 10^5 \text{ с}^{-1}$, II - $\Gamma_{p0} = \delta = 2 \cdot 10^5 \text{ с}^{-1}$, III - $\Gamma_{p0} = \delta = 3 \cdot 10^5 \text{ с}^{-1}$.

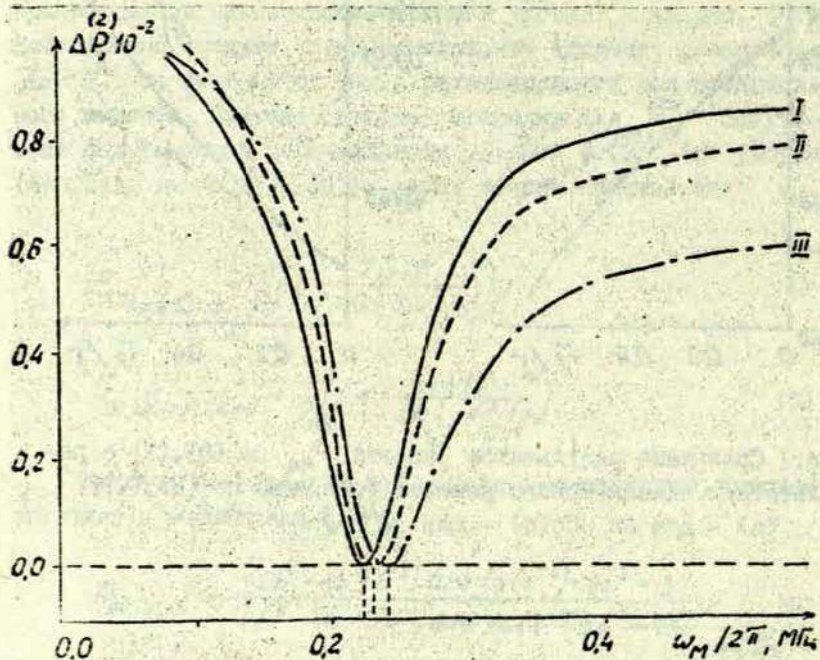


рис. 3. Сигналы РБ вблизи резонанса, рассчитанные при $\Omega/\sqrt{2} = 0$ (I); 0,1 (II); 0,3 (III). Остальные параметры соответствуют приведенным на рис. 4.

точке резонанса. Расчеты приведены для параметров, имевших место в эксперименте, результаты которого приведены на рис. 4. Из рис. 3 видно, что эффект Ханле возбужденного уровня не только заметно изменяет форму сигнала, но, что важнее, вызывает смещение положения резонанса относительно положения при $\Omega = 0$. Экспериментально зарегистрированный в [6, 7] сигнал приведен на рис. 4.

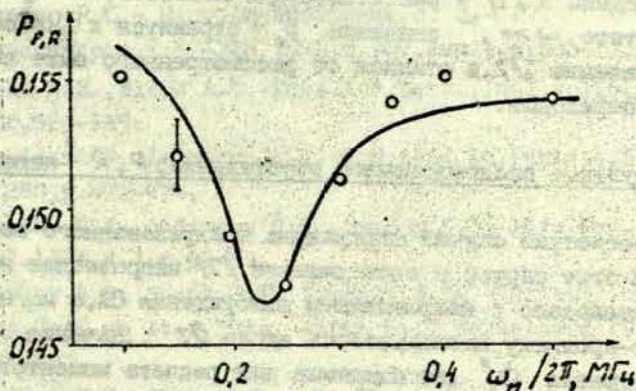


Рис. 4 Сигнал степени поляризации А → Х флуоресценции $^{130}\text{Te}_2$, измеренный в [7] в зависимости от частоты модуляции $\omega_M/2\pi$ вблизи резонанса; $H=465$ Гс. Сплошная кривая — расчет по (3)' с подгонкой Γ_{p0} в предположении $f=3 \cdot 10^5 \text{ с}^{-1}$, $\varepsilon=0,8$, $g_b/\sqrt{2}=0,35 \cdot 10^{-10} \text{ с}$.

Линейно поляризованное возбуждение; Q -переходы

Выражение для степени поляризации флуоресценции в случае Q -переходов (т.е. когда $J'=J''$), рассчитанное с точностью до второго приближения, имеет вид

$$\begin{aligned}
 \rho_Q^{(2)} = & \frac{1}{1 + 4 \frac{\Omega^2}{\Gamma_2^2}} \cdot \frac{3}{1 + 5 \frac{\Gamma_2}{\Gamma_0}} \left\{ 1 - \right. \\
 & \left. \frac{3 \Gamma_{p0} \left[\left(\frac{\Gamma_2}{\Gamma_0} - 1 \right) D_{20} + \left(1 - \frac{\Gamma_2}{\Gamma_0} + 1 \right) D_{22} - (60 \frac{\Gamma_2}{\Gamma_0} + 12) E_{22} \right]}{21 \left(5 \frac{\Gamma_2}{\Gamma_0} + 1 \right) - \Gamma_{p0} \left[\left(35 \frac{\Gamma_2}{\Gamma_0} + 7 \right) D_{00} + \left(7 \frac{\Gamma_2}{\Gamma_0} + 5 \right) D_{20} + \left(21 \frac{\Gamma_2}{\Gamma_0} + 6 \right) D_{22} \right]} \right\} \quad (10)
 \end{aligned}$$

При $\Gamma_2 = \Gamma_0$, $\Omega = 0$ выражение (10) упрощается до

$$\rho_Q^{(2)} = \frac{1}{2} \left[1 - \frac{9 \Gamma_{p0} D_{22}}{42 - \Gamma_{p0} (14 D_{00} + 4 D_{20} + 9 D_{22})} \right] \quad (10)'$$

Сравнение (10)' с классическим расчетом при $\omega = \omega_H = 0$, $\varepsilon = 0$ приведено в /1/ - рис. 2. Нетрудно показать, что при большой частоте $\omega \gg \nu$ значение $f_a^{(2)}$ стремится к классическому значению 1/2, в отличие от рассмотренного выше случая P, R - переходов.

Циркулярно поляризованное возбуждение; P, R - переходы

Рассмотрим случай циркулярно поляризованного возбуждения. В этом случае в эксперименте /7/ направление наблюдения совпадало с направлением возбуждения Ox , а магнитное поле по-прежнему накладывалось вдоль Oz . значения функции Дзяконова Φ_f^x , необходимые для расчета моментов $f_a^{(2)}$ с точностью до второго приближения, - см. (I) - приведены в /9/ для поляризации по правому кругу. При расчете для поляризации по левому кругу следует использовать переход $\Phi_f^x = (-1)^{2x} [\Phi_f^x]^*$. Подставляя $f_a^{(2)}$ в формулу интенсивности излучения - см. /1/, (3), - можно рассчитать наблюдаемый сигнал РБ. В частности, выражение для степени циркулярности

$$C = \frac{I6^+ - I6^-}{I6^+ + I6^-}$$

в случае P, R - переходов имеет вид

$$C_{P,R}^{(2)} = \frac{5}{7} \left\{ 1 - \frac{\Gamma_{P0} (214 D_{20} + 1008 D_{11} + 216 D_{22})}{5 [1764 - \Gamma_{P0} (1176 D_{00} + 16 D_{20} + 504 D_{11} + 450 D_{22})]} \right\} \quad (II)$$

Здесь приняты те же упрощения, что и в (10)', иначе выражение имеет слишком громоздкий вид. Отметим, что (II) содержит как РБ в ориентации, т.е. между подуровнями с $|\Delta M_J| = 1$, описываемый D_{11} , так и в выстраивании, т.е. между $|\Delta M_J| = 2$, описываемый D_{22} . В эксперименте /6,7/ измерялся первый из них, а второй, имевший значительно меньшую амплитуду, зарегистрирован лишь качественно.

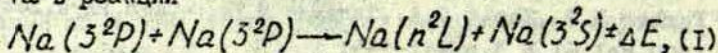
С п и с о к л и т е р а т у р ы

1. Фербер Р.С. - Настоящий сборник, с. 3 - 27.
2. Александров Е.Б. - УФН, 1972, т. 107, вып. 4, с. 595-622.
3. Bell W.E., Bloom A.L. - Phys. Rev. Lett., 1961, vol. 6, p. 280-282, 623-625.
4. Gouedard G., Lehmann J. - C. - C. R. Acad. Sc. Paris, s. B, 1975, t. 280, p. 471-474.
5. Brooks R.A., Anderson C.N., Ramsay N.F. - Phys. Rev., 1964, vol. 136A, N 1, p. 62-68.
6. Ferber R.S., Shmit O.A., Tamaniš M. Ya. - In: Abstr. of Europ. Conf. on Atom. Phys. April 6-10. Heidelberg, 1981, p. 321-322.
7. Ferber R.S., Okunevich A.I., Shmit O.A. et al. - Chem. Phys. Lett., 1982, vol. 90, N 6, p. 476-480.
8. Ferber R.S., Shmit O.A., Tamaniš M. Ya. - Chem. Phys. Lett., 1979, vol. 61, N 3, p. 441-444.
9. Дьяконов М.И. - ЭТФ, 1964, т. 47, вып. 6, с. 2213-2221.
10. Фербер Р.С. Оптическое выстраивание и ориентация молекул Na_2, K_2 в основном электронном состоянии. Дис. на соиск. учен. степ. канд. физ.-мат. наук. Рига, 1979. 169 с.

С.М.Папернов, Ж.Л.Швежда,
 М.Л.Янсон
 ЛГУ им.П.Стучки
 (Рига)

МЕХАНИЗМЫ ЗАСЕЛЕНИЯ АТОМНЫХ И МОЛЕКУЛЯРНЫХ
 СОСТОЯНИЙ НАТРИЯ ПРИ ОПТИЧЕСКОМ ВОЗБУЖДЕНИИ
 УРОВНЕЙ $Na(3^2P)$

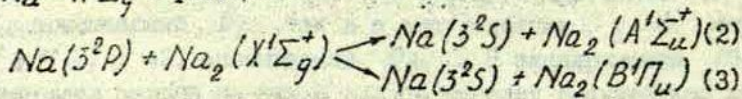
В предыдущей работе авторов /1/ изучены процессы, связанные с появлением высоковозбужденных состояний атомов Na в реакции



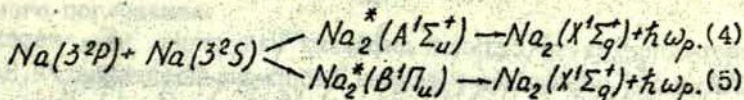
где n - главное квантовое число; L - квантовое число электронного орбитального момента атома; ΔE - разность удвоенной энергии 3^2P -уровня и энергии n^2L -уровня атома Na . В частности, были получены относительные эффективные сечения для возбуждения $Na(n^2L)$ в процессе (I).

В настоящей работе сделан переход от измерений относительных значений сечений реакции (I) к абсолютным значениям. Он базируется на прямых измерениях концентраций возбужденных атомов $Na(3^2P)$ по поглощению ими излучения натриевой лампы.

Кроме того, в данной работе изучены столкновительные каналы возбуждения молекулярных полос $A'\Sigma_u^+ - X'\Sigma_g^+$ и $B'\Pi_u - X'\Sigma_g^+$ в реакциях



и получены эффективные сечения этих процессов. Проанализирован также частичный вклад процесса фоторекомбинации в заселение состояний $A'\Sigma_u^+$ и $B'\Pi_u$ молекулы Na_2 :



Установлен сложный, ступенчатый характер процесса возбуждения молекулярного состояния 3Y_9 (неидентифицированного), ответственного за излучение диффузной полосы $^3Y_9 - ^3\Sigma_u^+$ в области 420-450 нм.

Эксперимент

В данной работе использовался модифицированный вариант установки, описанной в /1/. Изменения состояли в том, что для измерения поглощения был введен дополнительный оптический канал, содержащий натриевую дуговую лампу ДНас18, излучение которой просвечивало область возбуждения. Кроме того, в систему регистрации в канале монохроматора МДР-3 включалась система счета фотонов для измерения интенсивности молекулярной флуоресценции в экспериментах по селективному возбуждению тонких подуровней $3^2P_{3/2}$ и $3^2P_{1/2}$.

Излучение лазера на красителях (родамин 6Ж) фирмы "Спектра физикс" модель 580-01 имело спектральную ширину $\Delta\lambda \approx 0,01$ нм на длине волны 589,0 нм. Типичная плотность мощности в зоне возбуждения составляла $\rho \leq 1$ Вт/см². Температура отрезка с металлом варьировалась в пределах 493 - 723 К, что соответствовало концентрациям нормальных атомов натрия $N_{0A} = (9,0 \cdot 10^{12} - 1,8 \cdot 10^{16})$ см⁻³ и молекул натрия - $N_{0M} = (3,1 \cdot 10^{10} - 5,2 \cdot 10^{14})$ см⁻³.

Измерение абсолютных квантовых потоков атомной и молекулярной флуоресценции проводилось по методу сравнения с эталонным источником сплошного спектра - ленточной вольфрамовой лампой СИ 10-300.

Как уже отмечалось выше, в основе определения эффективных сечений процессов (1-5) лежит определение концентраций возбужденных атомов $Na(3^2P)$. В нашем случае широко применяемый метод измерения концентрации возбужденных атомов по интенсивности флуоресценции с 3^2P -уровней

затруднен из-за сильной диффузии излучения на переходе $3^2P \rightarrow 3^2S$. Применение теории Бибермана-Холштейна [2,3] в условиях неоднородного по объему возбуждения может привести к весьма значительной ошибке в определении эффективного времени жизни состояния $Na(3^2P)$. Например, эффективные сечения возбуждения 5^2S -уровня в реакции (I), полученные в работах [4] и [5] на основе упомянутого выше метода, различаются более чем на четыре порядка.

В настоящей работе разработана методика определения концентраций возбужденных атомов по измеренному поглощению спектральных линий, для которых нижним уровнем является 3^2P -уровень в наиболее общем случае фойгтовского вида контуров линий поглощения и испускания.

Излучение натриевой лампы ДНАС18 на длине волны 818,3 нм (переход $3^2P_{1/2} - 3^2D_{3/2}$) или 819,4 нм ($3^2P_{3/2} - 3^2D_{3/2}, 5/2$) просвечивало область флуоресценции. Регистрировалось ослабление потока, излучаемого лампой при включении возбуждения. Экспериментально измерялось относительное поглощение A :

$$A = \frac{\Phi_0 - \Phi_l}{\Phi_0}, \quad (6)$$

где Φ_0 - поток излучения натриевой лампы, падающий на ячейку; Φ_l - прошедший поток; l - длина поглощающего слоя в направлении щели спектрометра.

Использование интегралов Фойгта ([6] с. 485) для описания спектральных распределений коэффициента поглощения и яркости поглощаемой линии было обусловлено широкой областью изменения температуры паров натрия (200-450°С) и результатами интерферометрического исследования контуров линий излучения натриевой лампы (эксперименты по измерению контуров линий испускания серии натриевых ламп ДНАС18 и отбор последних по важнейшим параметрам были проведены совместно с С.Я.Путниной).

Учет вида и сложного характера линий поглощения и излучения приводит к следующему выражению для относитель-

ного поглощения:

$$A = 1 - \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\frac{x_0^2 a_2}{T} \sum_{i=1}^{+\infty} b_i \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{e^{-x^2}}{a_2^2 + (\omega_i - x)^2} dx\right) \times \sum_{i=1}^{+\infty} b_i \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(-\frac{y^2}{L^2})}{a_1^2 + \frac{(\omega_i - y)^2}{L^2}} dy \Bigg/ \int_{-\infty}^{+\infty} \sum_{i=1}^{+\infty} b_i \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(-\frac{y^2}{L^2})}{a_1^2 + \frac{(\omega_i - y)^2}{L^2}} dy dw \quad (7)$$

где $\omega_i = 2\sqrt{\ln 2} (\nu - \nu_{oi}) / \Delta\nu_{D2}$ - частотное расстояние от центра i -той компоненты тонкой или сверхтонкой структуры - ν_{oi} в единицах доплеровской ширины контура поглощения; a_1 и a_2 - параметры Фойгта для линий излучения и поглощения; $L = \frac{\Delta\nu_{D1}}{\Delta\nu_{D2}}$ - отношение полуширин гауссовских частей контуров излучения и поглощения; b_i - относительная интенсивность i -той компоненты тонкой и сверхтонкой структуры рассматриваемой линии (/6/ с.523). Коэффициент поглощения в центре линии \mathcal{K}_0 связан с концентрацией возбужденных атомов в 3^2P -состоянии - $N^*(3^2P)$ следующим соотношением:

$$\mathcal{K}_0 = \sqrt{\frac{\ln 2}{T}} \frac{g_k}{g_i} \frac{c^2}{4\pi \nu_{ki}^2} \frac{f_{ki}}{\Delta\nu_{D2}} N^*(3^2P), \quad (8)$$

где g_k и g_i - статистические веса верхнего и нижнего уровней; f_{ki} и ν_{ki} - вероятность и частота перехода, на котором измеряется поглощение.

Результат расчета на ЭВМ ЕС-1022 кривых роста $A = A(\mathcal{K}_0, t)$ согласно формуле (7) приведен на рис.1. Используя экспериментально измеренные значения A , по кривым роста были получены соответствующие им значения оптической плотности $\mathcal{K}_0 l$, и на их основе по формуле (8) вычислялась заселенность обоих подуровней $3^2P_{1/2}$ и $3^2P_{3/2}$ атома натрия.

Эффективные сечения возбуждения уровней $Na(n^2l)$ в парных столкновениях 3^2P -атомов

Зависимость интенсивности линий, излучаемых с уровней, лежащих выше 3^2P -состояния ($4^2S, 3^2D, 5^2S, 4^2D, 5^2P, 6^2S, 5^2D$), от мощности возбуждения с хорошей точностью описывается квадратичной функцией (см.рис.2). Коэффициент

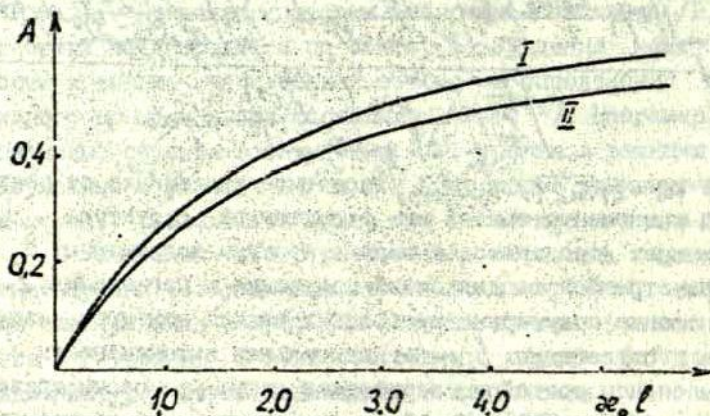


Рис. I. Кривые зависимости относительного поглощения A от оптической плотности паров натрия при $T=550$ К: I - линия 818,3 нм ($3^2P_{1/2} - 3^2D_{3/2}$); II - линия 819,4 нм ($3^2P_{3/2} - 3^2D_{3/2, 5/2}$).

наклона прямой $\ln I_{\psi} - f(\ln p_{Na})$ для всех исследуемых 14 линий близок к двум. В условиях низких плотностей лазерной мощности (I Вт/см²) это указывает на процесс (I) как основной канал возбуждения атомов $Na(n^2L)$.

Формула для эффективного сечения процесса (I) имеет следующий вид:

$$Q(n^2L) = \frac{\sum_k N_k A_k}{[N^*(3^2P)]^2 \bar{v}} \quad (9)$$

где $\sum_k N_k A_k$ - суммарный квантовый поток флуоресценции со всех тонких к-подуровней уровня n^2L ; \bar{v} - средняя относительная скорость сталкивающихся атомов; $N^*(3^2P)$ - концентрация возбужденных атомов $Na(3^2P)$.

Учет радиационных каналов, не наблюдаемых экспериментально (инфракрасная область $\lambda > 1,3$ мкм), проводился по таблицам вероятностей переходов [7]. \bar{v} - рассчитывалась

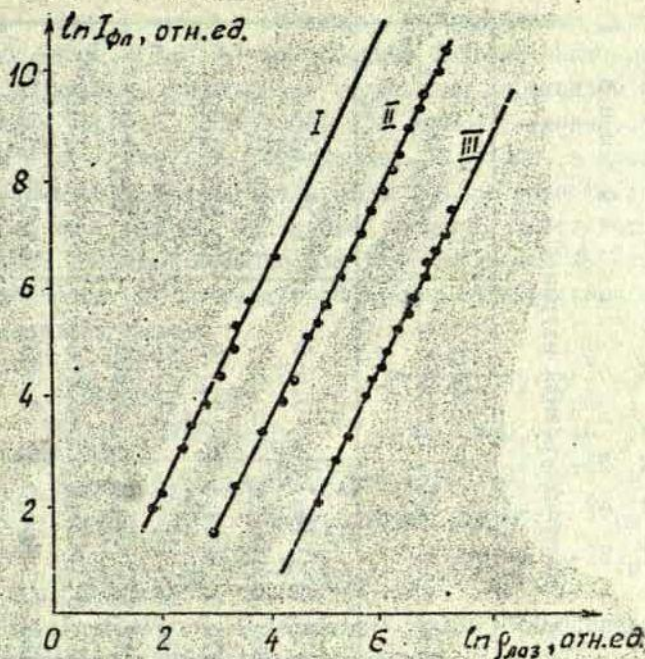


Рис.2 Зависимости относительной интенсивности атомных линий от плотности мощности лазерного излучения: I - $\lambda=498,28$ нм ($5^2D_{3/2, 5/2}-3^2P_{3/2}$), $k=2,03 \pm 0,09$; II - $\lambda=568,82$ нм ($4^2D_{3/2}-3^2P_{1/2}$), $k=2,01 \pm 0,03$; III - $\lambda=1138,15$ нм ($4^2S_{1/2}-3^2P_{1/2}$), $k=2,04 \pm 0,04$.

из предположения максвелловского распределения по скоростям возбужденных 3^2P -атомов.

Результаты, полученные при температуре отртостка с металлом 573К (концентрация нормальных атомов натрия $N_0 = 2 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$), приведены в табл. I. Как видно из таблицы, максимальные сечения имеют порядки 10^{-16} см^2 и характеризуют уровни, лежащие вблизи резонанса с удвоенной энергией 3^2P -атомов. С увеличением дефекта энергии ΔE в сторону отрицательной расстройки наблюдается быстрое уменьшение значений сечений $Q(\tau^2 L)$, что, на наш взгляд, подтверждает основную роль процесса (I) в возбуждении n^2L .

Таблица I

Эффективные сечения возбуждения атомарных уровней натрия

№	Уровень	Энергия уровня, эВ	Излучательный переход	λ , нм	Дефект энергии ΔE , эВ	$Q(n^2L)$, см ²
1	$5^2S_{1/2}$	4,116	$5^2S_{1/2} - 3^2P$	615,4; 616,1	+0,090	$(1,3 \pm 0,6) \cdot 10^{-16}$
2	4^2D	4,283	$4^2D - 3^2P$	568,8; 568,2	-0,077	$(1,7 \pm 0,7) \cdot 10^{-16}$
3	5^2P	4,344	$5^2P - 4^2S_{1/2}$	1074,9; 1074,6	-0,138	$(0,6 \pm 0,2) \cdot 10^{-17}$
4	$6^2S_{1/2}$	4,509	$6^2S_{1/2} - 3^2P$	514,9; 515,3	-0,303	$(1,8 \pm 0,8) \cdot 10^{-19}$
5	5^2D	4,591	$5^2D - 3^2P$	498,3; 497,8	-0,385	$(2,1 \pm 0,9) \cdot 10^{-19}$
6	$7^2S_{1/2}$	4,712	$7^2S_{1/2} - 3^2P$	474,8; 475,2	-0,506	$(0,9 \pm 0,4) \cdot 10^{-20}$
7	6^2D	4,759	$6^2D - 3^2P$	466,9; 466,5	-0,553	$(1,0 \pm 0,4) \cdot 10^{-20}$

атомов. Для уровней с большим положительным дефектом энергии (4^2S , 4^2P , 3^2D) наблюдаемые большие значения сечений могут быть объяснены каскадными переходами с вышележащих уровней. Для уровня 4^2S это 4^2P -уровень, а для уровня 3^2D — это 4^2F , 4^2P -уровни. Переходы в каскадно-заселяемые состояния лежат в инфракрасной области спектра $\lambda > 1,5$ мкм, что не позволило провести соответствующие измерения. Поэтому сечения для 4^2S , 4^2P и 3^2D -уровней надо понимать как сечения возбуждения спектральных линий. Они оказались равными:

$$Q_{818,3}(3^2D_{3/2} - 3^2P_{1/2}) = (1,3 \pm 0,5) \cdot 10^{-16} \text{ см}^2,$$

$$Q_{819,4}(3^2D_{3/2,5/2} - 3^2P_{1/2}) = (2,3 \pm 0,9) \cdot 10^{-16} \text{ см}^2,$$

$$Q_{1138,2}(4^2S_{1/2} - 3^2P_{1/2}) = (3,1 \pm 1,3) \cdot 10^{-16} \text{ см}^2,$$

$$Q_{1140,4}(4^2S_{1/2} - 3^2P_{3/2}) = (4,1 \pm 1,8) \cdot 10^{-16} \text{ см}^2,$$

$$Q_{3303/3302}(4^2P - 3^2S_{1/2}) = (4,3 \pm 1,9) \cdot 10^{-18} \text{ см}^2.$$

Значение сечения возбуждения уровня 4^2D попадает между величинами, приведенными в работах /8/ ($Q(4^2D) = 1 \cdot 10^{-17} \text{ см}^2$) и /9/ ($Q(4^2D) = 2,4 \cdot 10^{-15} \text{ см}^2$), авторы которых применяли метод кинетики флуоресценции. Эти результаты, по нашему мнению, являются наиболее достоверными из приводимых в литературе /4,5,8,9/. Помимо этого, полученное в данной работе сечение $Q(4^2D)$ лежит ближе всего к результату теоретического расчета, проведенного в /10/ и давшего значение $Q(4^2D) = 6,1 \cdot 10^{-16} \text{ см}^2$.

Механизмы и эффективность возбуждения состояния

$A^1\Sigma_u^+$ молекулы Na_2

Наиболее интенсивной молекулярной полосой в спектре флуоресценции паров натрия является полоса $A^1\Sigma_u^+ - X^1\Sigma_g^+$, которая почти на три порядка превосходит по интенсивности $B^1\Pi_u - X^1\Sigma_u^+$ и диффузную полосы. В условиях настоящего эксперимента могут иметь место три основных механизма возбуждения $A^1\Sigma_u^+$ -состояния Na_2 :

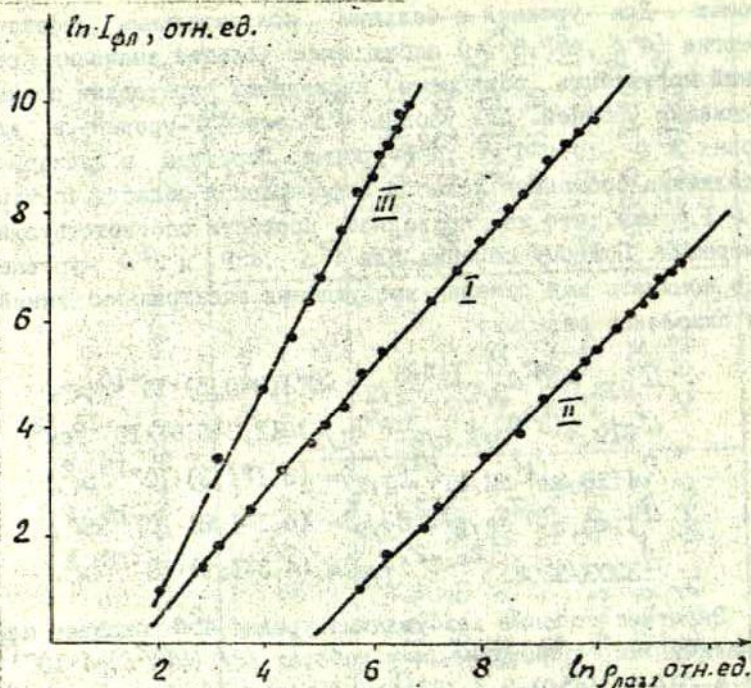
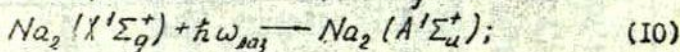
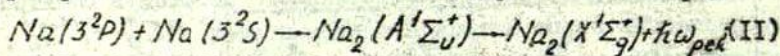


Рис.3 Зависимости относительной интенсивности молекулярных полос Na_2 от плотности мощности лазерного излучения: I - полоса $A^1\Sigma_u^+ - X^1\Sigma_g^+$, $k=0,99 \pm 0,01$; II - полоса $B^1\Pi_u - X^1\Sigma_g^+$, $k=1,05 \pm 0,02$; III - диффузная полоса, $k=1,95 \pm 0,07$.

1) прямое возбуждение лазерным излучением на длине волны 589,0 нм или 589,6 нм из основного $X^1\Sigma_g^+$ состояния



2) фоторекombинация в столкновениях двух атомов натрия



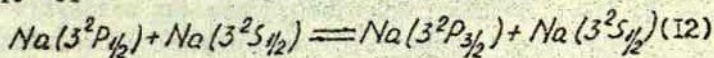
3) перенос энергии электронного возбуждения в атомно-молекулярных столкновениях согласно реакции (2).

Роль процесса (I0) была определена по измерениям ин-

тенсивности полосы А — Х при незначительной отстройке частоты лазерной линии от частоты атомного перехода $3^2S - 3^2P$. При этом интенсивность полосы А — Х падала более чем на порядок, что позволило в условиях данного эксперимента оценить верхнюю границу вклада рассматриваемого механизма в заселение состояния $A^1\Sigma_u^+$, как 5%.

Для выяснения парциального вклада процесса фоторекомбинации в заселение состояния $A^1\Sigma_u^+$ был проведен эксперимент, в котором исследовалась эффективность возбуждения $A^1\Sigma_u^+$ -состояния Na_2 при селективном возбуждении тонких компонент $3^2P_{1/2}$ и $3^2P_{3/2}$ уровня 3^2P (возбуждение производилось на длинах волн 589,6 и 589,0 нм соответственно). Поскольку $A^1\Sigma_u^+$ -состояние коррелирует в пределе разделенных атомов с $3^2P_{1/2} + 3^2S_{1/2}$ и, как было показано ранее /II/, при термических скоростях разлет (а следовательно, и сближение) атомов происходит адиабатически, то можно ожидать появления полосы А — Х в процессе фоторекомбинации лишь при возбуждении подуровня $3^2P_{1/2}$. Напротив, столкновительное заселение $A^1\Sigma_u^+$ -терма (реакция 2) может происходить без строгих правил отбора для полного момента атома. В последнем случае интенсивность полосы А — Х ожидается пропорциональной полной концентрации возбужденных атомов N^* (сумме заселенностей $3^2P_{1/2}$ и $3^2P_{3/2}$ подуровней 3^2P -уровня атома Na), в случае же фоторекомбинации — только концентрации в $3^2P_{1/2}$ -состоянии.

Требование селективности возбуждения подуровней $3^2P_{1/2}$ и $3^2P_{3/2}$ приводит к необходимости работы при концентрациях невозбужденных атомов натрия $N_{0A} < 1 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$, ибо в этих условиях роль процесса перемешивания компонент тонкой структуры —



становится достаточно малой.

Эксперимент показал, что интенсивность флуоресценции в полосе $A^1\Sigma_u^+ - X^1\Sigma_g^+$ с хорошей точностью следует полной концентрации возбужденных атомов $N^* = N_{1/2}^* + N_{3/2}^*$ и при

условии равенства полных концентраций не зависит от того, какая из тонких компонент ($3^2P_{1/2}$ или $3^2P_{3/2}$) возбуждается. Например, при температуре $T=573$ К ($N_{0A}=6,5 \cdot 10^{13}$ см $^{-3}$) отношение интенсивности полосы А — Х при возбуждении подуровня $3^2P_{1/2}$, обозначаемой $I_{A-X}(1/2)$, к интенсивности при возбуждении подуровня $3^2P_{3/2}$ — $I_{A-X}(3/2)$ равно $\frac{I_{A-X}(1/2)}{I_{A-X}(3/2)} = 0,5$; одновременно отношение полных концентраций возбужденных атомов при преимущественном заселении подуровней $3^2P_{1/2}$ и $3^2P_{3/2}$ получается равным $\frac{N^*(1/2)}{N^*(3/2)} = 0,4$ (в скобках указано квантовое число углового момента возбуждаемого тонкого подуровня), в то время, как отношение заселенностей подуровня $3^2P_{1/2}$ при селективном возбуждении тонких компонент 3^2P -уровня достигает значения $\frac{N_{1/2}^*(1/2)}{N_{1/2}^*(3/2)} = 3,2$.

Таким образом, данный эксперимент показывает, что наиболее вероятным механизмом возбуждения $A^1\Sigma^+$ -терма молекулы N_2 является перенос энергии возбуждения в реакции (2). В согласии с предложенным механизмом высвечивания полосы А — Х находится экспериментально наблюдаемая линейная зависимость интенсивности полосы $A^1\Sigma^+ - X^1\Sigma^+$ от плотности мощности возбуждающего излучения (см. рис. 3). Построение зависимости $\ln I_{A-X}$ от $\ln \rho_{\text{из}}$ позволило определить коэффициент наклона прямой $k=0,99 \pm 0,01$; что указывает на прямую пропорциональность интенсивности полосы А — Х плотности лазерного потока.

Исходя из предположения о столкновительном механизме возбуждения $A^1\Sigma^+$ -состояния в реакции (2), эффективное сечение этого процесса определяется по формуле

$$Q(A^1\Sigma^+) = \frac{\Phi_{A-X}}{N^*(3^2P)N_{0M}\bar{v}}, \quad (13)$$

где Φ_{A-X} — полный квантовый поток флуоресценции в полосе А — Х; N_{0M} — концентрация невозбужденных молекул; \bar{v} — средняя относительная скорость сталкивающихся частиц. Полученные из эксперимента значения дали среднее значение $Q(A^1\Sigma^+) = (1,5 \pm 0,5) \cdot 10^{-14}$ см $^{-3}$. Этому сечению соответствует константа скорости реакции (2) $k = (1,5 \pm 0,5) \cdot 10^{-9}$ см 3 /с, которая находится в удовлетворительном согласии с суммарной констан-

той скорости столкновительного переноса энергии в состоянии $A^1\Sigma_u^+$ и $a^3\Pi_u$, полученной методом кинетики флуоресценции в работе /12/ и равной $k = (3,4 \pm \frac{1}{1}, \frac{6}{1}) \cdot 10^{-9} \text{ см}^3/\text{с}$. При этом отношение константы скорости столкновительного переноса энергии в состояние $a^3\Pi_u$ к константе скорости переноса в состояние $A^1\Sigma_u^+$ достигает значения $2,7 \pm 0,8$ /12/. Этот факт свидетельствует о возможности получения высокой заселенности $a^3\Pi_u$ -состояния Na_2 , которое, будучи метастабильным /12/, может служить промежуточным звеном в процессах ступенчатого возбуждения более высоких энергетических состояний Na_2 (например, 3Y_g , см. ниже).

Механизмы и эффективность возбуждения состояния

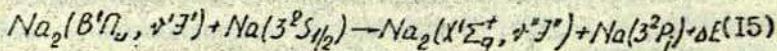
$V^1\Pi_u$ молекулы Na_2

Несколько иная ситуация возникает при возбуждении полосы $V^1\Pi_u - X^1\Sigma_g^+$. В этом случае столкновительный механизм (3) уже не может быть столь эффективным, поскольку имеет место отрицательный дефект энергии $\Delta E \approx 0,42$ эВ между энергией молекулы в нижнем колебательном состоянии $v' = 0$ $V^1\Pi_u$ -терма (отсчитываемой от дна потенциальной ямы состояния $X^1\Sigma_g^+$) и энергией атома в 3^2P -состоянии. Это означает, что энергетически в таком процессе могут участвовать только находящиеся в основном состоянии молекулы Na_2 , внутренняя энергия которых $u \geq 0,42$ эВ. Доля таких димеров от общего числа невозбужденных молекул может быть рассчитана, исходя из известного соотношения (/18/ с. 92) для заселенности отдельного колебательно-вращательного уровня двуатомной молекулы при равновесном распределении

$$N_{v',j'} = \frac{g_{v',j'}}{Z_{v'}} N_{0,0} \frac{V}{kT} e^{-\frac{u_{v',j'}}{kT}} (2j'+1) e^{-\frac{B(j'+1/2)^2}{kT}} e^{-\frac{G(v'+1/2)}{kT}}, \quad (14)$$

где B, G - вращательная и колебательная константы соответственно; $Z_{v'}$ - идеальная статистическая сумма; $g_{v',j'}$ ядерные статистические веса антисимметричного и симметричного вращательного уровней. Для молекулы Na_2 , $\frac{g_{v',j'}}{Z_{v'}} \approx 0,75$ и

$g^s/\beta_{sg} = 1,25$. Доля молекул, энергетически способных участвовать в реакции (3), может быть определена, если просуммировать выражение (14) по всем v' и J' вплоть до уровней, энергия которых совпадает с упомянутым выше энергетическим дефектом (0,42 эВ). Разность полного числа невозбужденных молекул и полученного при суммировании значения даст искомую долю молекул. Так, для $T=584$ К расчет на ЭВМ КС10-22 по формуле (14) дает долю молекул в состоянии $X^1\Sigma_g^+$ способных участвовать в реакции (3), равную $1,32 \cdot 10^{-3}$ от полного числа невозбужденных молекул. Полученное значение в принципе является оценкой верхней границы искомой части димеров, поскольку расчет предполагает, что при столкновительном возбуждении возможны изменения вращательного квантового числа молекулы на любое значение. Тем не менее это предположение, по нашему мнению, является оправданным, поскольку обратный процесс



хорошо вписывается в рамки статистической теории реакций /14/, предполагающей приблизительно равновероятный выход продуктов реакции (15) в широком диапазоне вращательных каналов.

Таким образом, доля молекул, энергетически способных участвовать в реакции (3), составляет приблизительно 10^{-3} , что резко снижает эффективность столкновительного канала. Это приводит к возможности конкуренции рекомбинационного канала (5) и переноса энергии в реакции (3). Для выяснения парциального вклада каждого из этих процессов в возбуждение полосы $B^1\Pi_u - X^1\Sigma_g^+$ был проведен эксперимент по селективному возбуждению тонких компонент $3^2P_{3/2, 1/2}$ уровня 3^2P при концентрации нормальных атомов $N_0 < 1 \cdot 10^{14}$ см $^{-3}$. Методика эксперимента была такой же, как и для полосы $A - X$, с той лишь разницей, что $B^1\Pi_u$ -состояние коррелирует в пределе разделенных атомов с $3^2P_{3/2} + 3^2S_{1/2}$, и по этому можно скидывать появление в процессе фоторекомбинации полосы $B - X$ только при возбуждении подуровня $3^2P_{3/2}$.

Эксперимент показал, что интенсивность флуоресценции в полосе В — Х молекулы N_2 зависит от полного числа возбужденных атомов N^* и не зависит от доли в этом числе атомов в состояниях $3^2P_{1/2} - N^*_{1/2}$ или $3^2P_{3/2} - N^*_{3/2}$. Например, при $T=513$ К $N_{0A} = 2,3 \cdot 10^{13}$ см⁻³ отношение интенсивности полосы В — Х при возбуждении $3^2P_{3/2}$ подуровня к интенсивности при возбуждении $3^2P_{1/2}$ составило $\frac{I_{В-Х}(3/2)}{I_{В-Х}(1/2)} = 3,0$; одновременно отношение полных концентраций возбужденных атомов оказалось равным $\frac{N^*(3/2)}{N^*(1/2)} = 2,6$, в то время как отношение заселенностей подуровня $3^2P_{3/2}$ составило $N^*_{3/2}(3/2) / N^*_{3/2}(1/2) = 19,2$.

Полученный результат указывает на доминирующую роль столкновительного процесса (3) в заселении $V^1\Pi_u$ -состояния молекулы N_2 . Фактором, несколько уменьшающим вероятность фоторекомбинации через $V^1\Pi_u$ -состояние, является наличие потенциального барьера (0,069 эВ) у этого молекулярного термина.

Эффективное сечение реакции (3) было рассчитано по формуле

$$Q(V^1\Pi_u) = \frac{\Phi_{В-Х}}{N^*(3^2P)N_{0M}\bar{v}}, \quad (16)$$

где $\Phi_{В-Х}$ — полный квантовый поток флуоресценции в полосе В — Х.

Как видно из (16), значение эффективного сечения усредняется по ансамблю невозбужденных молекул в состоянии $X^1\Sigma_g^+$, участвующих в реакции (3). Для полной концентрации димеров, определяемой упругостью насыщающих паров, выражение (16) дает значение $Q(V^1\Pi_u) = (1,4 \pm 0,4) \cdot 10^{-17}$ см². Однако, как уже указывалось выше, при расчете эффективного сечения процесса столкновительного возбуждения необходимо брать число молекул, энергетически способных участвовать в данном процессе. При учете этого обстоятельства формула (16) дает значение сечения $Q(V^1\Pi_u) = (0,7 \pm 0,2) \cdot 10^{-14}$ см², которое по порядку близко к значению столкновительного возбуждения состояния $A^1\Sigma_u^+$. С приведенной моделью возбуждения состояния $V^1\Pi_u$ хорошо согласуется наблюдаемая

в эксперименте линейная зависимость интенсивности молекулярной флуоресценции в полосе В — Х от плотности мощности лазерного излучения (см.рис.3).

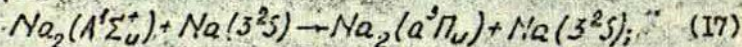
Механизмы возбуждения диффузной молекулярной полосы

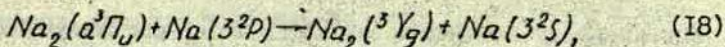
При лазерном возбуждении паров щелочных металлов в спектре молекулярной флуоресценции довольно часто присутствуют диффузные полосы /15-20/. Их происхождение, как правило, нелегко идентифицировать, поскольку излучательный переход происходит с высоких электронных состояний молекулы, причем чаще всего триплетных, симметрия которых пока еще слабо изучена. Механизмы заселения этих состояний могут быть самыми разнообразными: например, в результате прямого лазерного возбуждения из триплетного основного состояния $^3\Sigma_u^+$ /17/ или в процессе столкновительного перехода молекулы из синглетного электронно-возбужденного состояния в триплетное /17,20/.

В условиях данного эксперимента могут быть три канала возбуждения диффузной полосы в области 420-450 нм:
 I. Фоторекомбинация при столкновении двух 3^2P -атомов. Однако в этом случае яма 3Y_g -состояния (неидентифицированного) должна быть очень глубокой ($\approx 1,2$ эВ). Кроме того должны были бы высвечиваться и другие полосы, берущие начало из Σ и Π -термов, коррелирующих с $3^2P + 3^2P$ в пределе разделенных атомов. Однако таковые не наблюдаются. В заключение надо отметить, что интенсивность диффузной полосы должна была бы быть пропорциональной квадрату концентрации возбужденных атомов. Такая зависимость изучалась, однако пропорциональность обнаружена не была (см. ниже).

Другие каналы содержат в качестве промежуточного метастабильное состояние $a^3\Pi_u$, в котором может происходить эффективная аккумуляция энергии /12/.

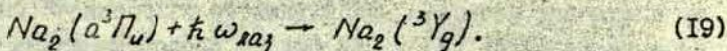
2. Столкновительное ступенчатое возбуждение: 3Y_g -терма в реакциях





причем переход молекул Na_2 из $A^1\Sigma_u^+$ в $a^3\Pi_u$ может быть спонтанным за счет пересечения потенциальных кривых состояний $a^3\Pi_u$ и $A^1\Sigma_u^+$ /12/.

3. Радиационно-столкновительный канал, протекающий согласно реакции (17), с последующим радиационным возбуждением на лазерной частоте:



Каналам 2 и 3 отвечают схемы, приведенные на рис.4.

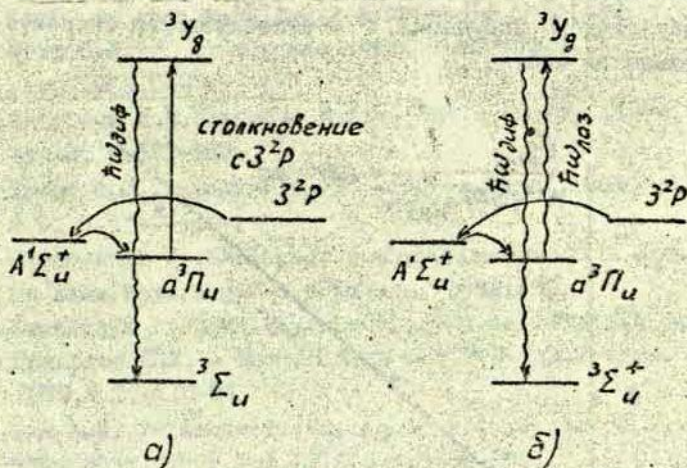


Рис.4 Столкновительный ступенчатый (а) и радиационно-столкновительный (б) каналы возбуждения 3Y_g состояния молекулы Na_2 .

Интенсивность диффузной полосы должна быть пропорциональна квадрату концентрации возбужденных атомов $[N(3^2P)]^2$

или квадрату плотности мощности лазерного излучения ρ^2 в канале 2; либо квадрату плотности мощности возбуждающего излучения ρ^2 или произведению $N^*(3^2P)\rho$ в канале 3. Эксперимент, в котором измерялись зависимости интенсивности диффузной полосы от концентрации возбужденных атомов и от плотности мощности лазерного излучения, показал, что:

- 1) интенсивность диффузной полосы пропорциональна квадрату плотности мощности возбуждающего излучения ρ^2 (см. рис. 3);
- 2) интенсивность диффузной полосы пропорциональна первой степени концентрации возбужденных атомов $N_a(3^2P)$;
- 3) отношение $\frac{\Phi_{диф}}{N^*(3P)\rho_{лаз}\bar{v}}$ прямо пропорционально концентрации невозбужденных молекул (см. рис. 5) (здесь $\Phi_{диф}$ - квантовый поток в диффузной полосе, $\rho_{лаз}$ - плотность мощности возбуждающего излучения, \bar{v} - относительная скорость сталкивающихся частиц).

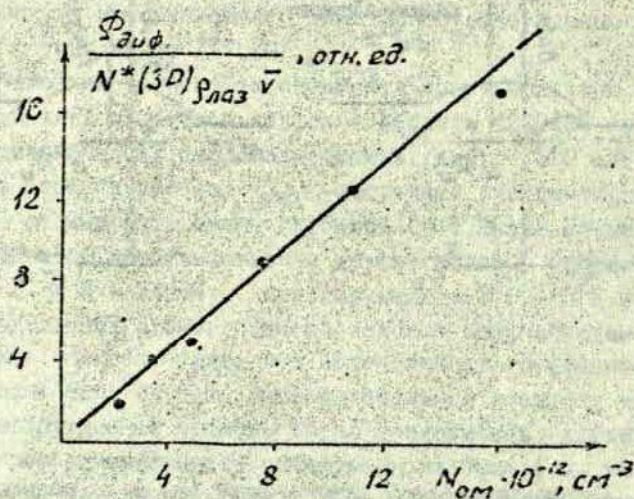


Рис. 5. Зависимость отношения $\frac{\Phi_{диф}}{N^*(3P)\rho_{лаз}\bar{v}}$ от концентрации невозбужденных молекул натрия.

Таким образом, эксперимент указывает, что механизм, включающий радиационное возбуждение из 2^3P_u -терма, являет-

ся основным каналом возбуждения диффузной полосы в данных экспериментальных условиях.

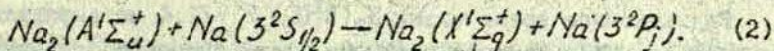
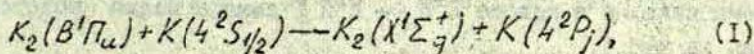
С п и с о к л и т е р а т у р ы

1. Папернов С.М., Швейжда Ж.Л. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. /Под ред. Э.К. Краулинь/. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1981, с. 31-41.
2. Биберман Л.М. - ЖЭТФ, 1947, т. 17, вып. 5, с. 416-426.
3. Holstein I. - Phys. Rev., 1947, vol. 72, N 12, p. 1212-1233.
4. Kushawaha V.S., Leventhal J.J. - Phys. Rev. A, 1982, vol. 25, N 1, p. 570-571.
5. Allegrini M., Bicchi P., Moi L. - In: Abstracts VIII Int. Conf. on Atom. Phys. Aug. 2-6, Göteborg, 1982, A88.
6. Фриш С.Э. Оптические спектры атомов. М.; Л.: Физматгиз., 1963. 640 с.
7. Андерсон Э.М., Зилитис В.А. - Опт. и спектр., 1961, т. 16, вып. 2, с. 177-187.
8. Krebs D.J., Scheerer L.D. - J. Chem. Phys., 1981, vol. 75, N 7, p. 3340-3344.
9. Huennekens J., Gallagher A. - In: Abstracts VIII Int. Conf. on Atom. Phys. Aug. 2-6, Göteborg, 1982, A89.
10. Kowalczyk P. - Chem. Phys. Lett., 1979, vol. 68, N 2, p. 203-207.
11. Папернов С.М. - Изв. АН Латв ССР. Сер. физ. и техн. наук, 1979, № 2, с. 16-24.
12. Lam L.K., Fujimoto T., Gallagher A.C., Hessel M.M. - J. Chem. Phys., 1978, vol. 68, N 8, p. 3553-3561.
13. Герцберг Г. Спектры и строение двухатомных молекул. - М.: ИЛ, 1949. 403 с.
14. Janson M.L., Klavins J.P. - Chem. Phys. Lett., 1982, vol. 86, N 5, 6, p. 453-457.
15. Kopystynska A., Kowalczyk P. - Opt. Commun., 1979, vol. 28, N 1, p. 70-81.
16. Allegrini M., Moi L. - Opt. Commun., 1980, vol. 32, N 1, p. 91-95.
17. Клявиныш Я.П., Янсон М.Л. - Опт. и спектр., 1982, т. 53, вып. 4, с. 630-634.

18. Brom J.M., Broida H.P. - J.Chem.Phys., 1974, vol.61, N 3, p.982-989.
19. Korchevoy Yn.P., Lukashenko V.I., Lukashenko S.N. - Physica Scripta, 1979, vol.19, N 4, p.271-275.
20. Woerdman J.P. - Opt.Commun., 1978, vol.26, N 4, p.216-218.

МОЛЕКУЛЯРНО-АТОМНЫЕ ПРОЦЕССЫ ПЕРЕНОСА ЭНЕРГИИ
 ПРИ ВОЗБУЖДЕНИИ ПАРОВ ЩЕЛОЧНЫХ МЕТАЛЛОВ
 ИЗЛУЧЕНИЕМ Kr^+ -ЛАЗЕРА

Продолжая цикл работ /1-3/, посвященных исследованию столкновительного переноса энергии возбуждения (ПЭВ) от двухатомных молекул к атомам методом лазерной флуоресценции, в настоящей работе мы изучали ПЭВ в парах Na_2 и K при возбуждении Kr^+ -лазером. Линии генерации $\lambda = 647,1$ нм и $\lambda_2 = 676,3$ нм Kr^+ -лазера, попадающие в полосу поглощения $X^1\Sigma_g^+ \rightarrow A^1\Sigma_u^+$ димера Na_2 и в полосу $X^1\Sigma_u^+ \rightarrow B^1\Pi_u$ K_2 , дает возможность изучения следующих процессов ПЭВ:



Ранее были получены эффективные сечения этих процессов, усредненные по нескольким колебательно-вращательным $\psi'F'$ -уровням $Na_2(A)$ и $K_2(B)$, которые заселились линией $\lambda = 632,8$ нм He-Ne-лазера /1,2/. Однако для выяснения механизма димер-атомного ПЭВ важно получение сведений о зависимости эффективности процесса от начальных колебательно-вращательных состояний димера. В связи с этим в данной работе определялись эффективные сечения ПЭВ (1) и ПЭВ (2) для других $\psi'F'$ -уровней, заселяемых линиями Kr^+ -лазера.

Для определения эффективных сечений согласно ранее описанной методике /2/ находили зависимость отклонения сум-

марного квантового потока на обеих D -линиях атомной флуоресценции $\sum NA_{ат}$, к суммарному квантовому потоку молекулярной флуоресценции $\sum NA_{мол}$, от концентрации невозбужденных атомов N_0 . Коэффициент наклона линейной части такой зависимости позволяет получить эффективное сечение Q при известном радиационном времени жизни τ возбужденного молекулярного состояния. На основе уравнения баланса заселенности для 2P -состояния атома нетрудно получить формулу, связывающую указанные величины:

$$\eta = \frac{\sum NA_{ат}}{\sum NA_{мол}} = Q \bar{v} \tau N_0,$$

где \bar{v} - средняя относительная скорость сталкивающихся частиц.

Полученные концентрационные зависимости отношения квантовых потоков на обеих линиях $4^2P_j \rightarrow 4^2S_{1/2}$ - перехода атома калия и в полосе $B^1\Pi_u \rightarrow X^1\Sigma_g^+$ димера калия представлены на рис. I.

Радиационное время жизни $K_2(B^1\Pi_u)$ $\tau = 12,4$ нс определено в работе [4]. С использованием этого значения получены эффективные сечения ПЭВ (I), одинаковые для обеих линий Kr^+ лазера ($Q = (1,3 \pm 0,4) \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$). Это значение в пределах ошибки равно ранее полученному для других начальных $v'J'$ уровней $K_2(B^1\Pi_u)$, заселяемых линией $\lambda = 532,8$ нм He-Ne лазера [1]. Все три полученные значения ПЭВ (I) являются усредненными по нескольким $v'J'$ -уровням $K_2(B^1\Pi_u)$. Каждой лазерной линией заселяются разные $v'J'$ -уровни. С целью обнаружения зависимости эффективности ПЭВ (I) от начальных $v'J'$ уровней $K_2(B^1\Pi_u)$ был дополнительно проведен качественный эксперимент при сканировании линии генерации ($\Delta\lambda = 0,01$ нм) лазера на красителе (R6G + R101). Одновременно в двух каналах записывались изменения интенсивности широкого участка полосы $B - X$ димера калия и D -линий атома калия. Дли-

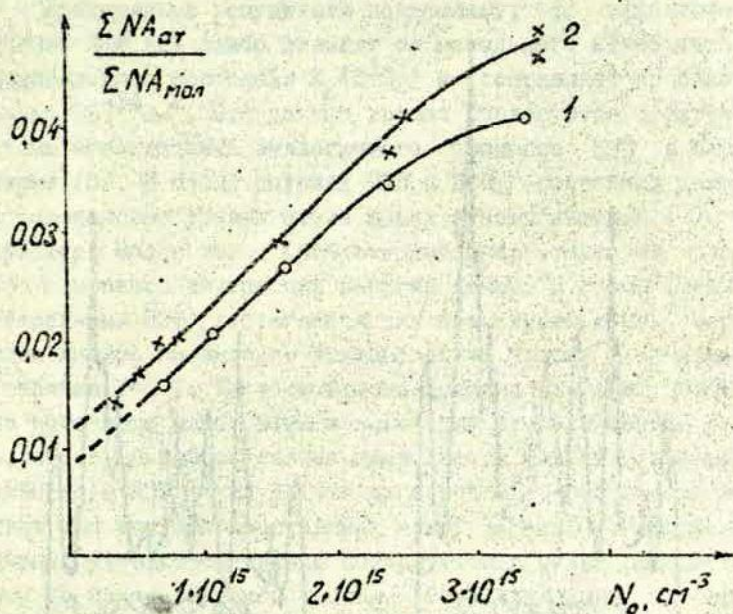


Рис. I Концентрационная зависимость отношения квантовых потоков атомной ($4^2P \rightarrow 4^2S$) и молекулярной ($V^I \Pi_u \rightarrow X^I \Sigma^+$) флуоресценции паров калия для линий возбуждения: 1- $\lambda_{\text{возб}} = 647,1$ нм и 2- $\lambda_{\text{возб}} = 676,3$ нм.

на волны возбуждающего лазера сканировалась в широких пределах внутри X — В полосы поглощения K_2 . При этом последовательно заселяется ряд $\mathcal{V}^I \mathcal{J}'$ -уровней, и изменение интенсивности молекулярной флуоресценции характеризует концентрацию возбужденных димеров. Изменение интенсивности D-линий в свою очередь пропорционально концентрации возбужденных атомов $K(4^2P)$. Таким образом, проследивая корреляцию между изменениями сигналов атомной и молекулярной флуоресценции, можно получить качественную информацию и

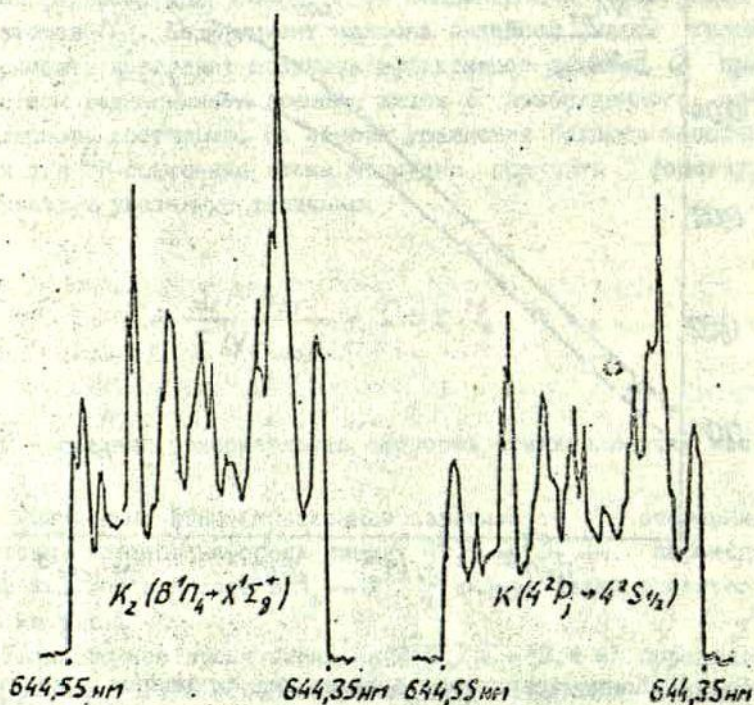


Рис.2 Изменения интенсивностей атомной и молекулярной флуоресценции паров калия при сканировании лазера на красителе.

об изменениях эффективного сечения молекулярно- атомного ПЭВ. Для этого, конечно, видно, чтобы радиационные времена жизни разных $\psi'J'$ -уровней, поочередно заселяемых при сканировании лазера на красителе, не слишком отличались друг от друга. Для $\psi'J'$ -уровней $B^1\Pi_u$ -состояния щелочных димеров это требование выполняется /5/. С использованном описанного метода было установлено полное совпадение ха-

рактера изменений интенсивности D -линий и полосы $B \rightarrow X$ калия при сканировании лазера на красителе (рис.2).

Приведенные результаты показывают, что эффективное сечение ПЭВ (1) слабо зависит от начального колебательно-вращательного состояния $K_2(B^1\Pi_u)$ и составляет приблизительно 10^{-14} см². Эти данные хорошо согласуются с результатами исследования аналогичного процесса ПЭВ в парах натрия /3/. В обоих случаях ПЭВ с $B^1\Pi_u$ -состояния димера на резонансные уровни атома носит экзоэнергетический ($\Delta E > 0$) характер. Более того, приближенный энергетический резонанс изменений внутренних энергий димера и атома (термонейтральный ПЭВ) достигается для безызлучательных переходов димера на высокие колебательные уровни основного состояния $X^1\Sigma_g^+$. Факторы Франка-Кондона для этих переходов исчезающе малы. Этим в некоторой степени объясняется то, что в данном случае не проявляется механизм квазирезонансного ПЭВ в результате диполь-дипольного взаимодействия при больших расстояниях между частицами. Измеренные сечения удовлетворительно согласуются с ранее рассчитанными по статистической теории бимолекулярных реакций /6/. В этой модели предполагается, что в ходе ПЭВ образуется столкновительный комплекс, в котором энергия перераспределяется по всем степеням свободы. Некоторым подтверждением этого является то, что не обнаружена зависимость эффективности ПЭВ от начальных колебательно-вращательных состояний димера.

Аналогичные экспериментальные исследования проводились и для ПЭВ (2) в парах натрия. Наклон концентрационных зависимостей отношения квантовых потоков атомной флуоресценции ($Na3^2P \rightarrow 3^2S$) и молекулярной флуоресценции ($Na_2 B \rightarrow X$) (рис.3) позволил определить усредненные по начальным $v'J'$ -уровням $Na_2(B^1\Sigma_u^+)$ эффективные сечения процесса (1). Для расчета сечений использовалось значение радиационного времени жизни $Na_2(A^1\Sigma_u^+) = 12,5$ нс, измеренное в работе /7/. Необходимо отметить, что это значение является средним по вращательным уровням $Na_2(A^1\Sigma_u^+)$,

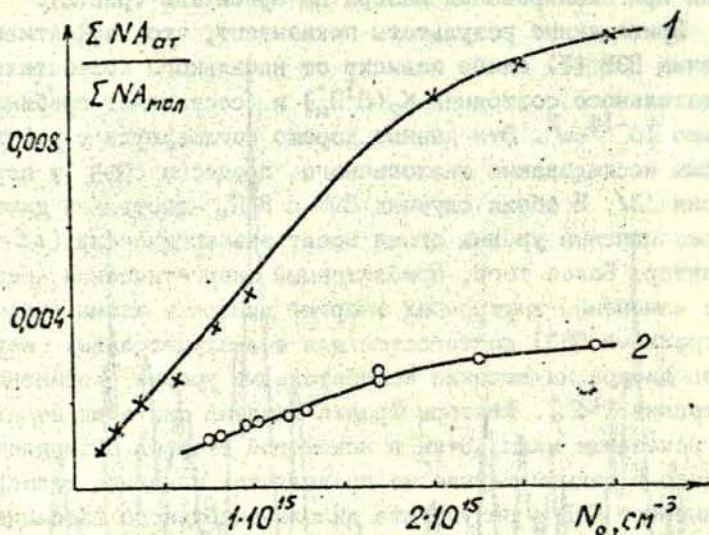


Рис.3 Концентрационная зависимость отношения квантовых потоков атомной ($Na 3^2P - 3^2S$) и молекулярной ($Na_2 A^1\Sigma_u^+ - X^1\Sigma_g^+$) флуоресценции паров натрия для линий возбуждения 1 - $\lambda_{\text{возб.}} = 647,1 \text{ нм}$ и 2 - $\lambda_{\text{возб.}} = 676,3 \text{ нм}$.

так как вращательная структура в этой работе не разрешалась. Ранее полученное эффективное сечение ПЭВ (2) для линии $\lambda = 632,8 \text{ нм}$ скорректировано с учетом данного значения τ и тоже приводится в табл. I. В табл. I приведена также разность внутренних энергий $\Delta E Na_2(A^1\Sigma_u^+, v'J')$ и $Na(3^2P)$ характеризующая экзо- или эндоэргичность ПЭВ для разных начальных $v'J'$ -уровней димера. $\Delta \epsilon$ - минимальная разность энергий разрешенного правилом отбора $\Delta J = \pm 1$ перехода $Na_2 A - X$ и перехода $Na 3^2P - 3^2S$. Расшифровка $v'J'$ -уровней для линий $\lambda = 647,1 \text{ нм}$ и $\lambda = 632,8 \text{ нм}$ дана в работах [8,

9/. Там же приведены и волновые числа излучательных переходов с $A^1\Sigma_u^+$, $v'J'$. Энергия $v''J''$ -уровней рассчитана по молекулярным константам $Na_2 X^1\Sigma_g^+$ -состояния /10/.

Т а б л и ц а I

Эффективные сечения ПЭВ (2) от $Na_2(A^1\Sigma_u^+)$ к $Na(3^2P_j)$

$\lambda_{\text{возб.}}, \text{нм}$	$v' J'$	$Q \cdot 10^{+15}, \text{см}^2$	$\Delta E, \text{эВ}$	$\Delta \varepsilon, \text{эВ}$
647,1	13 35	3 ± 1	-0,090	-0,110
	13 83		-0,020	-0,140
	20 98		+0,100	-0,070
676,3	Не идентиф.	$1 \pm 0,4$		
	14 45		-0,065	-0,100
632,8	16 17	0,7	-0,060	-0,070
	25 87		+0,140	-0,020
	22 86		+0,100	-0,035

Как видно из табл. I, в случае ПЭВ с $Na_2 A^1\Sigma_u^+$ на $Na(3^2P)$ эффективные сечения существенно различаются для разных линий возбуждения (т.е. для разных начальных $v'J'$ -уровней $Na_2 A^1\Sigma_u^+$). Этот факт подтверждается также отсутствием полной корреляции между изменениями интенсивности атомной ($Na 3^2P \rightarrow 3^2S$) и молекулярной ($Na_2 A \rightarrow X$) флуоресценции при сканировании лазера на красителе внутри полосы поглощения $X \rightarrow A$ (рис. 4).

Причиной некоторых различий в эффективных сечениях ПЭВ (2) могут быть разные значения ΔE для разных начальных уровней (табл. I). В случае эндотермического ПЭВ ($\Delta E < 0$) для любых начальных $v''J''$ -состояний димера процесс носит и эндотермический характер. Этим качественно объясняются более низкие значения сечений ПЭВ (2). Кроме того, наблюдаемое несоответствие между изменениями интенсивности

атомной и молекулярной флуоресценции (рис.4) может быть обусловлено и взаимным возмущением энергетически близких лежащих $\nu'J'$ -уровней в $A^1\Sigma_u^+$ и в $b^3\Pi_u$ состояниях $Na_2/II/$.

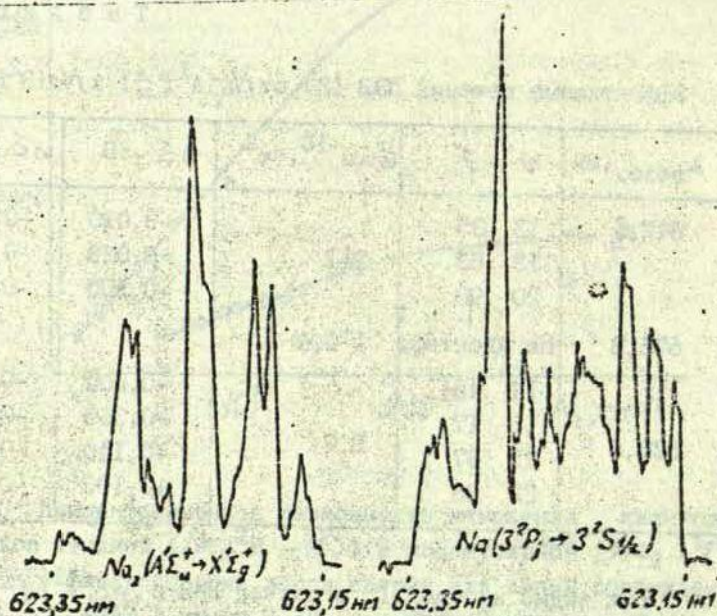
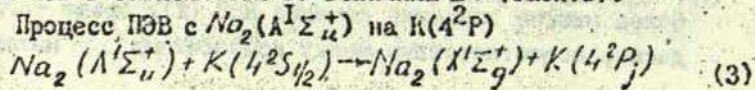


Рис.4 Изменения интенсивности атомной и молекулярной флуоресценции паров натрия при сканировании лазера на красителе.

Радиационное время жизни таких $\nu'J'$ -уровней может существенно отличаться от времени жизни для невозмущенных $\nu'J'$ -уровней $Na_2 A^1\Sigma_u^+$. И, наконец, согласно модели квазирезонансного диполь-дипольного ПЭВ, при больших расстояниях между частицами также ожидаются резкие изменения эффективности ПЭВ в зависимости от величины $\Delta\varepsilon$ (табл.1).

Процесс ПЭВ с $Na_2(A^1\Sigma_u^+)$ на $K(4^2P)$



носит чисто экзоэргический характер. Однако и в этом случае при сканировании лазера на красителе не обнаружено совпадение изменений интенсивности D -линии калия и $A \rightarrow X$ полосы димера натрия ^{*}) (рис.5).

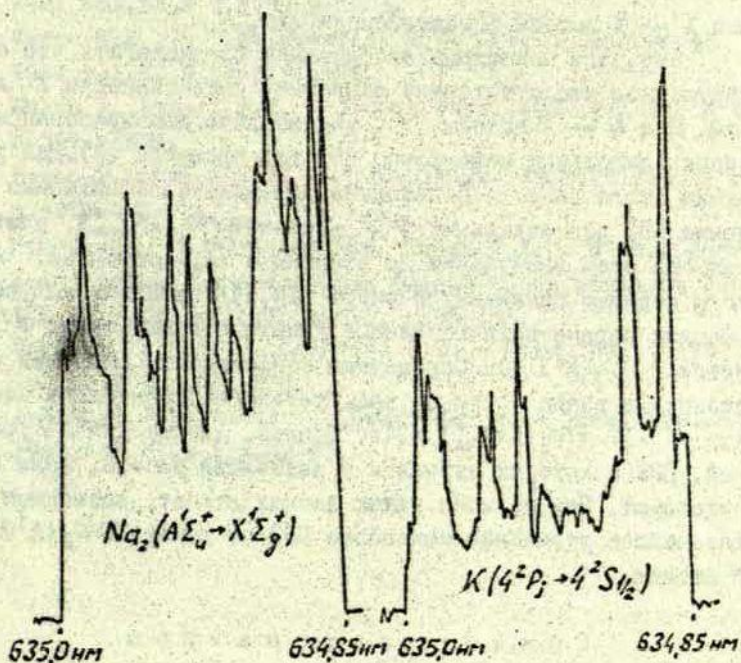


Рис.5 Изменения интенсивности атомной ($K 4^2P - 4^2S$) и молекулярной ($Na_2 A \rightarrow X$) флуоресценции при сканировании лазера на красителе.

^{*}) Примесь калия была достаточно малой, чтобы возбужденные молекулы NaK и K_2 не играли роли в заселении $K(4^2P)$. Молекулярная флуоресценция этих молекул не наблюдалась [2].

Величина сечения димер-атомного ПЭВ в рамках квазирезонансной модели зависит, кроме $\Delta\mathcal{E}$, еще и от фактора Франка-Кондона для квазирезонансного (с переходом атома) перехода димера /12/. В случае ПЭВ (3) факторы Франка-Кондона для переходов димера с $\Delta\mathcal{E} \rightarrow 0$ имеют заметную величину, так как D -линии калия лежат внутри наблюдаемой $A \rightarrow X$ полосы флуоресценции Na_2 .

Это дает некоторое обоснование предполагать, что обнаруженное несоответствие изменений интенсивности D линий K и $A \rightarrow X$ полосы Na_2 обусловлено квазирезонансным диполь-дипольным механизмом ПЭВ для процесса (3). Для решения этого вопроса необходимо определить эффективные сечения ПЭВ для отдельных $v'J'$ -уровней $Na_2(A^1\Sigma_u^+)$, учитывая при этом возмущение со стороны $b^3\Pi_u$ -состояния. Авторы недавно появившихся работ /13, 14/ приводят полученные ими первые количественные данные о возмущениях $v'J'$ уровней $Na_2(A^1\Sigma_u^+)$. Определены коэффициенты смешения состояний в зависимости от вращательного квантового числа для $v' = 17$ $Na_2(A^1\Sigma_u^+)$ /14/. Однако, данные для $v'J'$ -уровней, ПЭВ с которых изучался в настоящей работе, пока отсутствуют. При наличии таких данных станет возможным дальнейшее уточнение механизма ПЭВ от димера $Na_2(A^1\Sigma_u^+)$ к атомам.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

1. Копейкина Э.К., Янсон М.Л. - Опт. и спектр., 1975, т.39, вып.4, с.783-786.
2. Копейкина Э.К., Янсон М.Л. - Опт. и спектр., 1976, т.41, вып.3, с.378-384.
3. Janson M.L., Klavins J.P. - Chem.Phys.Lett., 1982, vol. 6, N 5/6, p.453-457.
4. Tango W.J., Zare R.N. - J.Chem.Phys., 1970, vol.53, N 6, p.3094-3100.
5. Demtröder W., Stetzenbach W., Stock M. et al. - J.Mol. Spectrosc., 1976, vol.61, N 4, p.382-394.

6. Грушевский В.Б. - В кн.: Сенсibilизированная флуоресценция смесей паров металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1975, вып. 5, с. 77-94.
7. Ducas T.W., Littman M.G., Zimmerman M.L. et al. - J. Chem. Phys., 1976, vol. 65, N 2, p. 842-843.
8. Verma K.K., Stwalley W.C., Zemke W.T. - J. Appl. Phys., 1981, vol. 52, N 9, p. 5419-5425.
9. Verma K.K., Vu T.H., Stwalley W.C. - J. Mol. Spectrosc., 1981, vol. 85, N 1, p. 131-149.
10. Kusch P., Hessel M.M. - J. Chem. Phys., 1978, vol. 68, N 6, p. 2591-2606.
11. Kusch P., Hessel M.M. - J. Chem. Phys., 1975, vol. 63, N 11, p. 4087-4088.
12. Копейкина Э.К., Смирнов Б.М., Янсон М.Л. - В кн.: Сенсibilизированная флуоресценция смесей паров металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1975, вып. 5, с. 95-104.
13. Engelke F., Hage H., Caldwell C.D. - Chem. Phys., 1982, vol. 64, N 2, p. 221-229.
14. Atkinson J.B., Becker J., Demtröder W. - Chem. Phys. Lett., 1982, vol. 87, N 1, p. 92-97.

Е.Н.Котликов, И.В.Дмитриева,
А.В.Николаев, В.И.Токарев
ЛГУ им.А.А.Жданова
(Ленинград)

ЗАВИСИМОСТЬ ЭФФЕКТИВНЫХ СЕЧЕНИЙ СТОЛКНОВЕНИЙ ОТ СКОРОСТИ СТОЛКИВАЮЩИХСЯ ЧАСТИЦ В НЕОНЕ

В настоящей работе излагается оригинальный метод исследования зависимости эффективных сечений столкновений для уровня и линии перехода от скорости сталкивающихся частиц. Исследования такого рода представляют интерес, так как позволяют определить тип взаимодействия сталкивающихся частиц /1/. До появления методов лазерной спектроскопии сверхвысокого разрешения исследование зависимости уширения линий от столкновений при средней скорости сталкивающихся частиц проводилось для постоянной релаксации выстраивания. В /2/ описан эксперимент по определению сечений деполяризующих столкновений для ряда уровней неона при различной температуре ячейки, в которой велось наблюдение сигналов выстраивания в разряде.

В работе /1/ было указано, что методы лазерной спектроскопии в принципе позволяют исследовать зависимость однородной ширины линии от скорости сталкивающихся частиц, поскольку при взаимодействии монохроматического излучения с атомами газа селективно возбуждаются только те атомы, проекция скорости которых на направление распространения лазерного излучения компенсирует расстройку между частотой лазерного излучения и центром линии перехода. Впервые эта возможность была реализована в работе /4/. Подобные эксперименты базируются на наблюдении зависимости интенсивности флуоресценции от магнитного поля при возбуждении одномодовым лазерным излучением. При этом исследуются как ширины

уровней, так и линии перехода.

Рассмотрим флуоресценцию ансамбля атомов, помещенных в магнитное поле и взаимодействующих со стоячей лазерной волной. Вблизи нулевых магнитных полей в флуоресценции такого ансамбля атомов будут наблюдаться интерференционные сигналы (сигналы Ханле /3/). С ростом магнитного поля в зависимости интенсивности спонтанного излучения от магнитного поля появится центральный резонанс насыщения, обусловленный раздвижением "беннетовских провалов" /1/. В образовании сигнала Ханле и центрального резонанса насыщения принимают участие атомы, проекция скорости которых на направление распространения лазерного излучения удовлетворяет условию $|k v_z| \approx |\Delta \omega|$, где k - волновой вектор, $\Delta \omega$ - разность частот генерации ω_z и центра линии перехода ω_0 . В первом приближении ширина сигнала Ханле определяется постоянной релаксации выстраивания $\Gamma(2)$ /3/, а ширина центрального резонанса насыщения определяется шириной линии перехода Γ_{ab} . С дальнейшим ростом магнитного поля "беннетовские провалы" от волн, бегущих во встречных направлениях, перекрываются и в спонтанном излучении наблюдается еще один "смещенный" резонанс насыщения /5/, ширина которого определяется однородной шириной линии перехода, а положение - разностью частот генерации и центра линии поглощения. В образование этого резонанса вносят вклад атомы, проекция скорости которых на направление распространения лазерного излучения удовлетворяет условию $k v_z = 0$.

Нами был проделан расчет сигналов в спонтанном излучении при магнитном сканировании. Атомная среда описывалась поляризационными моментами ρ_z^{2e} с константами релаксаций, соответствующими рангу поляризационного момента /3/. Релаксация среды определялась постоянными релаксацией выстраивания $\Gamma(2)$ и заселенности $\Gamma(0)$ верхнего a и нижнего b рабочих уровней генерации. Однородная ширина линии перехода задавалась постоянной Γ_{ab} . Прецессия в магнитном поле H определялась ларморовской частотой

ω_a : $\omega_a = \frac{h\nu_0}{h} gH / 3!$. Решение системы для ρ_2^x находилось методом итераций по мощности лазерного поля. Сигнал Ханле, пропорциональный $Re(\rho_{q-2}^{x-2})$, описывается линейными членами типа

$$\sum_{\pm} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{w(v) dv}{[\Gamma_a(2) + iq\omega_a][\Gamma_{ab} - i(\Delta\omega \mp \omega_a \pm kv)]}, \quad (1)$$

где $w(v)$ - максвелловская функция распределения атомов по скоростям, $L = a, b$.

Резонансы насыщения в первом нелинейном порядке теории возмущений описываются выражением

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{w(v) dv}{[\Gamma_{ab} + i(\Delta\omega - \omega_a - kv_2)][\Gamma_{ab} - i(\Delta\omega - \omega_a + kv_2)]} + \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{w(v) dv}{[\Gamma_{ab} + i(\Delta\omega - \omega_a - kv_2)][\Gamma_{ab} - i(\Delta\omega - \omega_a - kv_2)]}, \quad (2)$$

где первый член описывает смещенные резонансы насыщения, второй - центральный резонанс насыщения.

В случае, когда сечение соударений не зависит от скорости сталкивающихся частиц, Γ_{ab} и $\Gamma(2)$ не зависят от скорости, т.е. $\Gamma(x) = n\bar{v}\sigma^x + \Gamma_{рад}$, где n - концентрация атомов, \bar{v} - средняя скорость, $\Gamma_{рад}$ - радиационная ширина уровня или линии перехода. В остальных случаях с изменением скорости подансамбля атомов, обладающих определенной проекцией скорости, будет изменяться средняя частота столкновений и релаксационные процессы будут идти медленнее или быстрее в зависимости от поведения сечений. Моделируя столкновения, можно задать явный вид зависимости σ^2 от скорости и получить зависимость ширины сигнала Ханле и центрального резонанса насыщения от скорости сталкивающихся частиц. В простейшем случае, когда Γ не зависят от

скорости, выражения (1) и (2) имеют вид лоренцевского контура с шириной $\Gamma(2)$ и Γ_{ab} . В остальных случаях нахождение формы зависимости сигналов от скорости представляет самостоятельную задачу, выходящую за рамки настоящей работы.

Для изучения влияния столкновений на ширину уровней и линии перехода нами была собрана установка, блок-схема которой приведена на рис. 1. Внутри резонатора одночастотного гелий-неонового лазера, генерирующего на длине волны 632,8 нм (переход $3s_2-2p_4$), помещали квету, через боковую стенку которой вели наблюдение спонтанного излучения с уровня $2p_4$ на переходе $2p_4-1s_2$ ($\lambda = 667,8$ нм). На квету

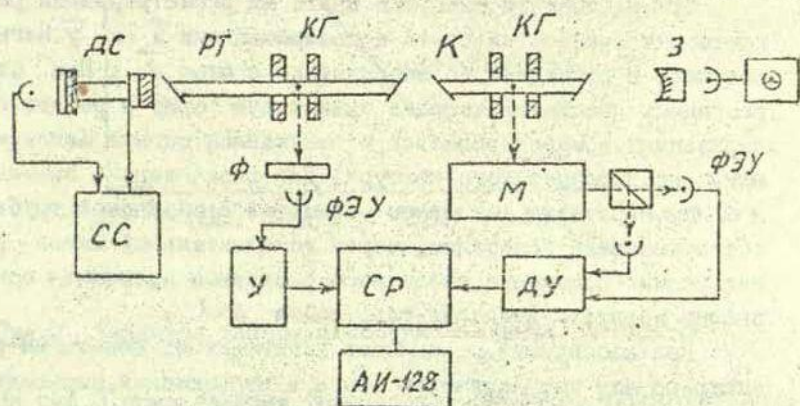


Рис. 1 Блок-схема экспериментальной установки: СС - система стабилизации, ДС - дифракционный селектор, РТ - разрядная трубка, КГ - катушки Гельмгольца, К - кветта, З - заднее зеркало резонатора, Ф - интерференционный фильтр, М - монохроматор, У - усилитель, СР - система регистрации, ДУ - дифференциальный усилитель.

накладывалось аксиальное магнитное поле. Наблюдалась зависимость интенсивности спонтанного излучения с определенными поляризациями от магнитного поля. Для наблюдения этой

зависимости использовалась система регистрации, описанная в /7/, в которой применено цифро-аналоговое преобразование сигналов с последующим накоплением на анализаторе импульсов.

Одночастотный режим работы лазера обеспечивался дифракционным селектором /8/, помещенным вблизи одного из зеркал резонатора. В эксперименте применен одночастотный режим работы генерации со 100%-ой модуляцией мощности. Для этого на пьезокерамику зеркала подавались прямоугольные импульсы напряжения заданной частоты. Подробно эти режимы работы описаны в /5/.

При наблюдении сигналов Ханле мы регистрировали разность интенсивностей света с поляризациями \bar{x} и \bar{y} . Магнитное поле \bar{H} совпадало по направлению с осью \bar{z} . При этом резонансы насыщения, имеющие одинаковую форму в разных поляризациях, компенсировались, и наблюдался сигнал Ханле, имеющий вид лоренцевского контура. Для определения значений $\Delta\omega$ мы наблюдали резонансы насыщения с разрядной трубки, обеспечивающей генерацию, через дополнительный канал регистрации. Положение смещенного резонанса насыщения однозначно задавало величину расстройки $\Delta\omega$.

При наблюдении резонансов насыщения из кюветы мы регистрировали интенсивность света в направлении, перпендикулярном \bar{H} и вектору поляризации лазерного излучения.

На рис. 2 изображена экспериментальная зависимость интенсивности флуоресценции с уровня $2p_4$ неона для двух различных расстроек частоты генерации. В соответствии с изложенной моделью в области малых магнитных полей наблюдаются сигнал Ханле и центральный резонанс насыщения. В магнитных полях, таких, что сдвиг зеемановского подуровня магнитным полем компенсирует разность частот $\Delta\omega = \omega_2 - \omega_0$, наблюдается смещенный резонанс насыщения.

В эксперименте по исследованию влияния столкновений на однородную ширину линии перехода снимались кривые, типа приведенных на рис. 2, при варьировании частоты расстройки лазерного излучения с помощью дифракционного селектора /5/.

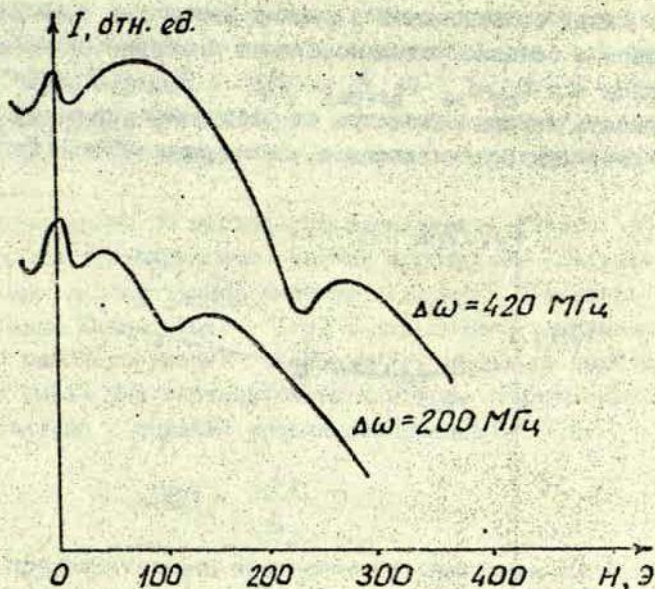


Рис.2 Типичная запись экспериментальных сигналов.

На рис.3 представлены результаты измерения зависимости ширины резонансов насыщения как функции расстройки частоты $\Delta\omega$ при давлении смеси гелия и неона 1,1 мм рт.ст. Соотношение $He : Ne = 5:1$. Расстройка $\Delta\omega$ менялась в пределах от 200 до 600 МГц. Мощность генерации при изменении частоты расстройки в этих пределах поддерживалась постоянной с точностью не менее 3%, причем изменения мощности не носили систематического характера. По нашим оценкам, такое изменение мощности меняло ширину резонансов не более чем на 1,0–1,5%. Крестиками отмечены результаты, полученные при обработке центральных резонансов насыщения, кружком – результаты, полученные при обработке смещенных резонансов насыщения. Штриховая прямая соответствует радиационной ши-

рине линии перехода и уширению лазерным полем Δ .

Вклад столкновений в ширину резонанса, который определялся в основном столкновениями с атомами гелия, рассчитывался как $\Gamma_{ст} = \Gamma_{аб} - \Gamma_{аб} \text{ рад} \cdot \Delta$. Из рис.3 видно, что зависимость ширины резонанса от расстройки, т.е. от проекции скорости сталкивающихся частиц, нелинейна. Расчет ре-

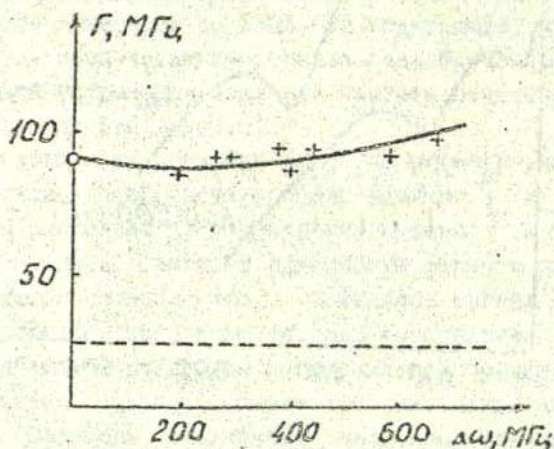


Рис.3 Экспериментальная зависимость однородной ширины линии перехода от расстройки.

зонансов насыщения для различных моделей взаимодействия проводился в работах /4,9/. В работе /9/ потенциал взаимодействия сталкивающихся атомов задавался в виде $U_n = C_n/r^n$, где n варьировалось от 3 (в этом случае $\Gamma_{ст}$ не зависит от скорости сталкивающихся частиц) до ∞ (модель абсолютно упругого шара). Расчет показал, что во всех случаях форма резонанса насыщения остается лоренцевской, а его ширина увеличивается с ростом частоты расстройки $\Delta\omega$ при $n > 3$.

Обработка полученных нами результатов проводилась по методике, изложенной в /9/, где рассчитывались резонансы,

аналитическое выражение, которых задаются формулой (2). Полученный нами результат соответствует спадающему с ростом относительной скорости сечению соударений для однородной ширины линии перехода: $\sigma(v) = \sigma_0 v^{-\beta}$, где $0 \leq \beta \leq 0,4$. Для дефазированных столкновений это соответствует потенциалу $k \geq 6$, что совпадает с известными литературными данными /1/.

Эксперимент по наблюдению зависимости ширины уровня от скорости сталкивающихся частиц проводился следующим образом. При фиксированной частоте генерации снимались кривые сигнала Ханле $I(x) - I(y)$ в спонтанном излучении с нижнего рабочего уровня генерации $2p_4$ неона из кюветы. Эти сигналы имели вид лоренцевского контура, ширина которого $2\Delta H$ связана с шириной уровня соотношением /3,6/

$$\Gamma(2) = \frac{A_0}{k} g \Delta H. \quad (3)$$

В предварительном эксперименте снимались сигналы Ханле при фиксированной частоте генерации как функции мощности лазерного излучения. Лазерное поле уширяет сигналы Ханле, и для определения ширины уровня необходима экстраполяция к нулевой мощности лазерного излучения.

Одновременно с сигналами Ханле с разрядной трубки, обеспечивающей генерацию, снимались кривые зависимости интенсивности флуоресценции от магнитного поля, типа изображенных на рис.2, по которым определялась величина расстройки частоты генерации $\Delta \omega$.

На рис.4 приведены результаты эксперимента по наблюдению зависимости $\Gamma(2)$ от проекции скорости на направление распространения лазерного излучения v_x^2 , нормированной на среднюю тепловую скорость атомов. Давление смеси гелий-неон равнялось 0,8 мм рт.ст., соотношение He:Ne=5:1. Штриховой линией обозначена радиационная ширина уровня $2p_4$ неона /1-3/. Результат при $v_x^2 = 0$ взят из работ по исследованию зависимости ширины сигнала Ханле от давления при возбуждении лазерным излучением /3/. Сплошная кривая -

зависимость $\Gamma(2)$ от v_z^2/\bar{v} , рассчитанная по экспериментальным точкам в предположении, что в области малых значений $v_z^2/\bar{v} = 1$ эта зависимость имеет параболический вид.

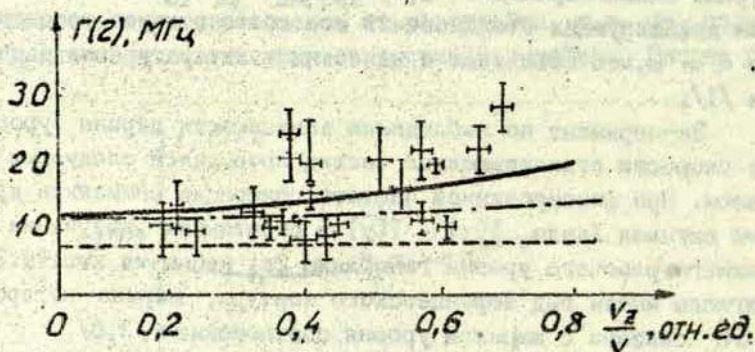


Рис.4 Экспериментальная зависимость ширины уровня $2p_4$ неона от скорости сталкивающихся частиц.

Для столкновений гелия с неоном характерен ван-дер-ваальсов потенциал взаимодействия ($n = 6$) /1,2,10/. На рис. 4 штрихпунктирной линией нанесена зависимость $\Gamma(2)$ от v_z^2/\bar{v} , рассчитанная в предположении ван-дер-ваальсова потенциала взаимодействия /10/. Из рисунка видно, что результаты эксперимента значительно расходятся с расчетом. Использование вместо ван-дер-ваальсова потенциала какого-либо другого, например, $3 \ll n \ll \infty$; также не может объяснить полученного результата.

Одной из возможных причин возникновения аномальной зависимости $\Gamma(2)$ от v_z^2/\bar{v} , по предположению М.П.Чайки, является анизотропия соударений для исследуемого подансамбля атомов, обладающих выделенной проекцией скорости на направление распространения лазерного излучения. Действительно; подансамбль атомов, обладающих отличной от \bar{v} проекцией скорости в направлении распространения лазерного излучения, будет выстроен за счет анизотропных столкновений /3/. Ансамбль атомов с проекцией скорости, равной \bar{v} , выстроен

не будет, поскольку для него все направления распространения равновероятны. Сигнал Ханле при возбуждении лазерным излучением выстроенного ансамбля атомов представляет собой в первом приближении сумму лоренцевского контура с шириной $2\Gamma(2)$ и свертки двух лоренцевских контуров, ширина которой меньше $2\Gamma(2)$. С изменением $\nu/2$ от нуля до $\bar{\nu}$ выстраивание за счет анизотропии столкновений падает до нуля, и ширина сигнала Ханле при возбуждении лазерным излучением такого ансамбля атомов растет.

Таким образом, на наш взгляд, предложенный метод исследования зависимости сечения столкновений от скорости сталкивающихся частиц оказывается пригодным для исследования зависимости однородной ширины линии перехода от столкновений. Что касается аналогичных исследований для ширины уровней по сигналам выстраивания, то требуется проведение дополнительных исследований влияния различных эффектов на ширину сигнала при возбуждении монохроматическим лазерным излучением.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

1. Летохов В.С., Чеботаев В.П. Принципы нелинейной лазерной спектроскопии. М.:Наука, 1975. 279 с.
2. Carrington C.G., Corney A., Durrant A.V. - J. Phys. B, 1972, vol. 5, N 5, p. 1001-1009.
3. Чайка М.П. Интерференция вырожденных атомных состояний. Л.: ЛГУ, 1975. 192 с.
4. Bjorklund G.C., Jevonson M.D. - Phys. Rev. A, 1981, vol. 24, N 1, p. 166-169.
5. Котликов Е.Н., Токарев В.И. - Опт. и спектр., 1979, т. 47, вып. I, с. 27-32.
6. Dumont M., Descamps B. - J. de Phys., 1968, vol. 29, p. 181 - 188.
7. Котликов Е.Н. - Вестн. ЛГУ, 1976, т. I, с. 159-170.
8. Троицкий Ю.В., Хюппсенен В.П. - Автометрия, 1971, №1, с. 52-56.
9. Иванов Э.И., Крылов И.Р., Савельев Ю.М. - Опт. и спектр., 1982, т. 52, вып. 2, с. 340-344.
10. Мацкевич В.К. - Опт. и спектр., 1974, т. 37, вып. 3, с. 411-419.

ВОЗБУЖДЕНИЕ АТОМОВ НАТРИЯ И БАРИЯ ЭЛЕКТРОННЫМ
УДАРОМ ИЗ СОСТОЯНИЙ $Na(3^2P_{3/2})$ И $Ba(5^1D_2)$

Определение вероятностей протекания процессов ступенчатого возбуждения необходимо для решения многих научных и прикладных задач. Сюда относятся задачи создания активных сред оптических квантовых генераторов, разработки и создания новых типов источников света и др. Исследование таких реакций представляет непосредственный интерес для физики столкновений, физики и химии плазмы. Эти процессы могут играть существенную роль в газоразрядной плазме, во многих случаях внося значительный вклад в общий баланс числа возбуждений и ионизаций.

Экспериментальных данных об эффективных сечениях ступенчатого возбуждения до настоящего времени в литературе крайне мало, в основном они относятся к инертным газам, причем получены преимущественно при исследовании газоразрядной плазмы. Лишь в 70-е годы благодаря развитию техники пересекающихся пучков удалось получить определенную информацию об эффективных сечениях возбуждения ряда спектральных переходов из метастабильных состояний атомов металлов, в частности, атомов стронция и бария /1/. Однако наличие у этих атомов нескольких метастабильных состояний не позволяло надежно определить вклад каждого из них в возбуждение исследуемых переходов. Что касается возбуждения атомов металлов электронным ударом из состояний, оптически связан-

ных с основным, то эти процессы к настоящему времени практически не изучены.

Применение техники пересекающихся атомного и электронного пучков с использованием излучения перестраиваемого лазера на красителях, позволяющего селективно изменять заселенность интересующих исследователей атомных состояний, открыло новые возможности для изучения ступенчатых процессов /2-4/. В данной работе излагаются результаты экспериментов по определению эффективных сечений возбуждения электронным ударом атома натрия из резонансно-возбужденного состояния $3^2P_{3/2}$ и атома бария из синглетного метастабильного состояния 5^1D_2 .

Концентрации нормальных атомов в пучках варьировались в пределах $(0,03-3,0) \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$, плотность тока электронного пучка составляла $(0,5-10,0) \cdot 10^{-3} \text{ А/см}^2$, ширина лазерной линии была сравнима с шириной контура линии поглощения, расходимость атомного пучка около 6° , мощность лазерных линий 5-20 мВт. Стабильность оптического возбуждения контролировалась по яркости линий лазерной флуоресценции. Во всех экспериментах использовался перестраиваемый лазер на красителе родамин 6Ж фирмы "Спектра Физикс", модель 580А, работавший в одночастотном режиме.

Исследование возбуждения атомов натрия электронным ударом из состояния $3^2P_{3/2}$

Эксперимент по исследованию ступенчатого возбуждения атомов натрия осуществлялся по схеме, изображенной на рис. 1. Атомы натрия в резонансном состоянии $3^2P_{3/2}$ образовывались в результате оптического возбуждения атомного пучка перестраиваемым лазером, настроенным на одну из компонент резонансного дублета 589,0 нм. Область оптического возбуждения пересекалась пучком электронов, ось которого совпадала с осью лазерного луча. Излучение лазера модулировалось, и на той же частоте осуществлялась регистрация излучения с вышележащих уровней. Таким образом можно было

получить информацию о процессах возбуждения электронным ударом спектральных переходов натрия из резонансно-возбужденного $3^2P_{3/2}$ -уровня.

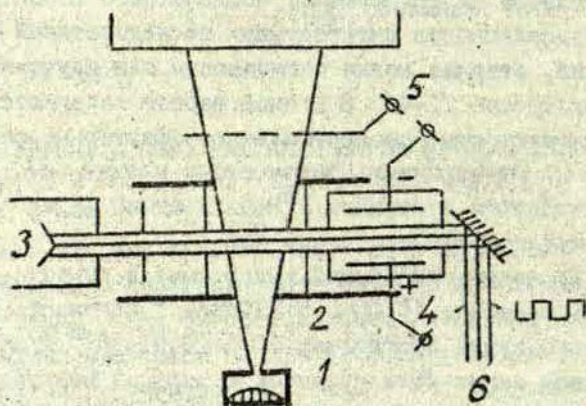
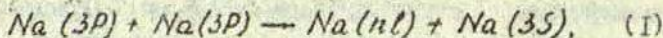
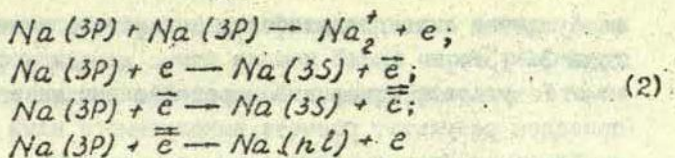


Рис. I Схема эксперимента по исследованию процесса ступенчатого возбуждения атомов натрия: 1 - источник атомов; 2 - формирующие щели; 3 - электронный пучок; 4 - коллектор электронов; 5 - коллектор ионов; 6 - лазерный луч.

Существенная трудность при проведении эксперимента заключалась в том, что и при отсутствии электронного пучка, т.е. под действием одного лишь лазерного излучения, наблюдалось достаточно интенсивное свечение атомных переходов с высоколежащих уровней. Такое интенсивное свечение можно объяснить как непосредственным возбуждением высоких состояний при парных столкновениях резонансно возбужденных атомов /5/



так и более сложным возбуждением, включающим процессы ионизации и столкновения с участием "разогретых" электронов /6/:



(мы не рассматриваем многофотонные процессы в связи с малой плотностью лазерного излучения в условиях наших экспериментов). Образование ионов при оптическом возбуждении атомного пучка нами было зарегистрировано непосредственно по измерениям тока на ионный коллектор.

Соответствующим выбором параметров пучков, в частности, уменьшением мощности лазерного возбуждения и использованием электронного пучка большой интенсивности, нам удалось уменьшить вклад реакций (1) и (2) в заселение исследуемых переходов. Тем не менее почти для всех линий этот вклад был сравним с полезным сигналом, обусловленным возбуждением атомов электронами из состояния $3^2P_{3/2}$. По этой причине нам удалось достаточно надежно измерить функцию

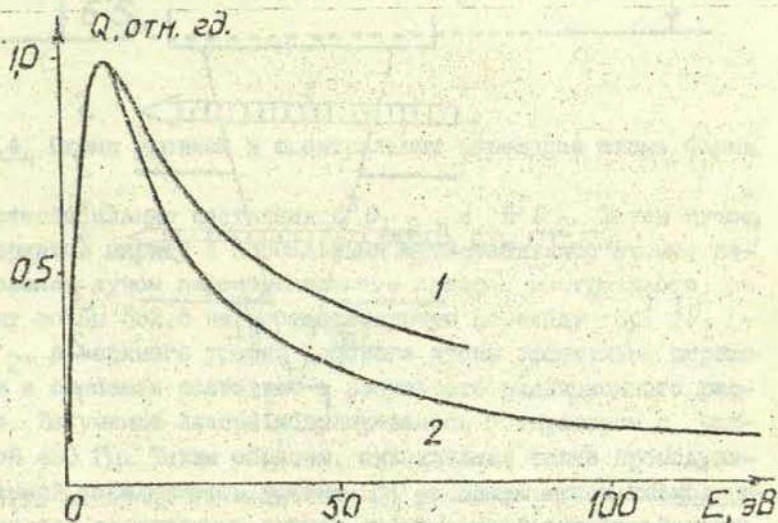


Рис. 2. Функции ступенчатого возбуждения перехода $\text{Na } 3D-3P$ рассчитанные (1) и полученные экспериментально (2).

возбуждения лишь для наиболее сильного оптического пере - хода $3D - 3P$.

Результаты измерений представлены на рис.2. Там же приведен результат расчета, выполненного нами в борновском приближении. Кривые нормированы в максимуме.

Результаты, полученные для натрия, следует рассмат - ривать как предварительные и носящие полуколичественный характер. в связи с тем, что картина столкновительных про - цессов оказывается достаточно сложной даже при сравнитель - но чистых экспериментальных условиях, характерных для ме - тодики пересекающихся пучков.

Исследование возбуждения атомов бария электронным ударом из состояния $Ba(5^1D_2)$

Схема эксперимента по исследованию ступенчатого воз - буждения атомов бария приведена на рис.3, а схема уровней

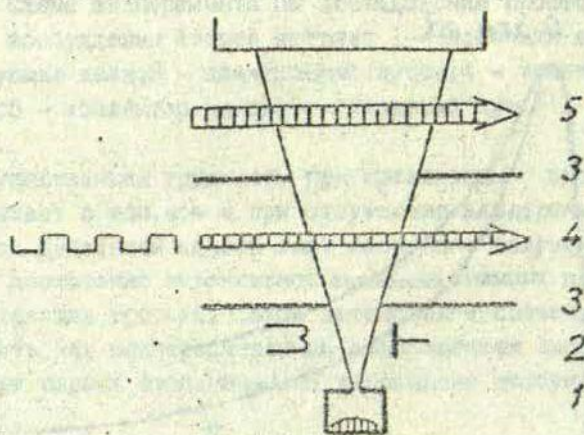


Рис.3 Схема эксперимента по исследованию процесса ступен - чатого возбуждения атомов бария: 1-источник атомов; 2- раз - рядная камера; 3- формирующие щели; 4- лазерный луч; 5- элек - тронный пучок.

и регистрируемых спектральных переходов атома бария - на рис.4. При прохождении пучка атомов бария через разрядную камеру осуществлялось эффективное конвертирование атомов

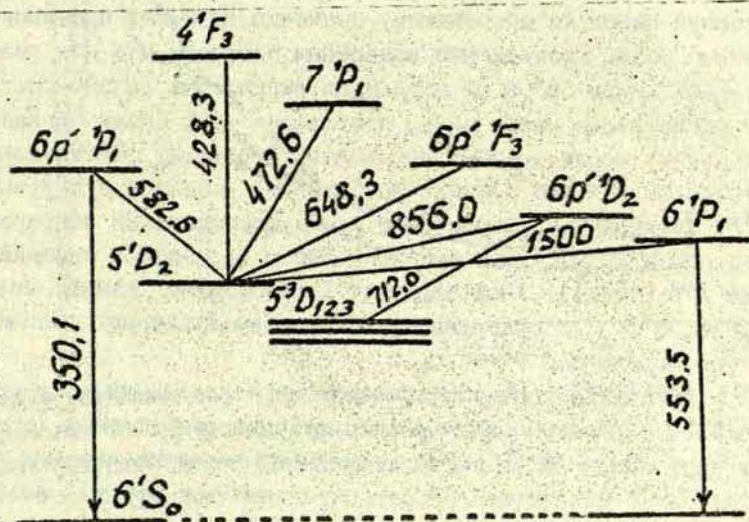


Рис.4. Схема уровней и спектральных переходов атома бария.

в метастабильные состояния $5^3D_{1,2,3}$ и 5^1D_2 . Затем пучок, содержащий наряду с нормальными метастабильными атомами, пересекался лучом перестраиваемого лазера, настроенного на длину волны 582,6 нм, соответствующую переходу $6p^1P_1 - 5^1D_2$, с верхнего уровня которого атомы эффективно переходили в основное состояние в результате радиационного распада. Излучение лазера модулировалось обтюратором с частотой 400 Гц. Таким образом, оказывалась также промодулированной заселенность уровня 5^1D_2 . Далее пучок атомов пересекался электронным пучком регулируемой энергии. Излучение, возникающее в зоне их пересечения, регистрировалось на частоте модуляции лазерного луча с последующим синхронным

детектированием. В результате выделялась только та часть излучения, которая была обусловлена возбуждением из состояний с модулированной заселенностью - метастабильного 5^1D_2 , а также основного 6^1S_0 . Изменения заселенностей этих состояний равны по абсолютному значению, но имеют противоположные фазы. Проведенные измерения показали, что для резонансной линии 553,5 нм амплитуда сигнала на выходе системы регистрации имела знак, противоположный знаку сигналов от других исследованных переходов. Этот факт естественно объяснить тем, что процесс возбуждения резонансного уровня 6^1P_1 электронным ударом идет преимущественно из основного состояния. Расчеты, выполненные нами в борновском приближении /7/ (табл. I), подтверждают пренебрежимо малый вклад уровня 5^1D_2 по сравнению с 6^1S_0 в возбуждение резонансного перехода $6^1P_1-6^1S_0$.

Абсолютная градуировка системы регистрации осуществлялась с помощью нормировки функции возбуждения резонансной линии 553,5 нм по известному значению сечения возбуждения в максимуме /8/, относительный ход функций возбуждения, измеренных нами и в работе /8/, совпадал с точностью 5%. Эффективные сечения возбуждения спектральных линий, соответствующих переходам $n \rightarrow m$, определялись из соотношения

$$\frac{Q_{nm}}{Q_{553,5}} = \frac{\Phi_{nm}}{\Phi_{553,5}} \cdot \frac{\lambda_{nm}}{553,5} \cdot \frac{i_{553,5}}{i_{nm}} \cdot \frac{K_{553,5}}{K_{nm}}$$

где Φ - регистрируемые световые потоки, λ - длина волны; i - ток электронного пучка, K - относительная спектральная чувствительность системы регистрации на данной длине волны. Погрешность определения эффективных сечений возбуждения с учетом использованных литературных данных /8/ оценивается фактором 2.

На рис. 5 приведены некоторые из полученных зависимостей эффективных сечений возбуждения от энергии электронного пучка. Абсолютные значения сечений возбуждения спектральных переходов из состояния 5^1D_2 приведены в табл. I. Там же приведены результаты расчетов, выполненных нами,

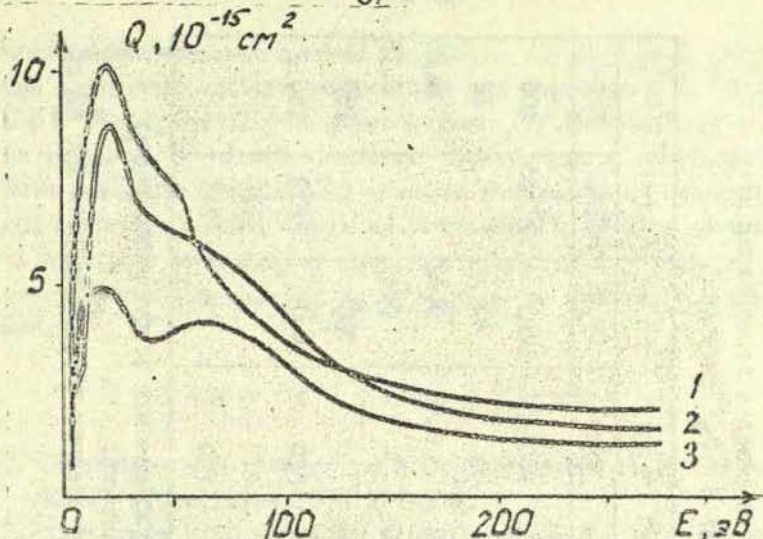


Рис. 5 Зависимость эффективных сечений возбуждения спектральных линий атомов бария из состояния 5^1D_2 от энергии электронного пучка (1-712,0 нм, 2-648,3 нм, 3-428,3 нм).

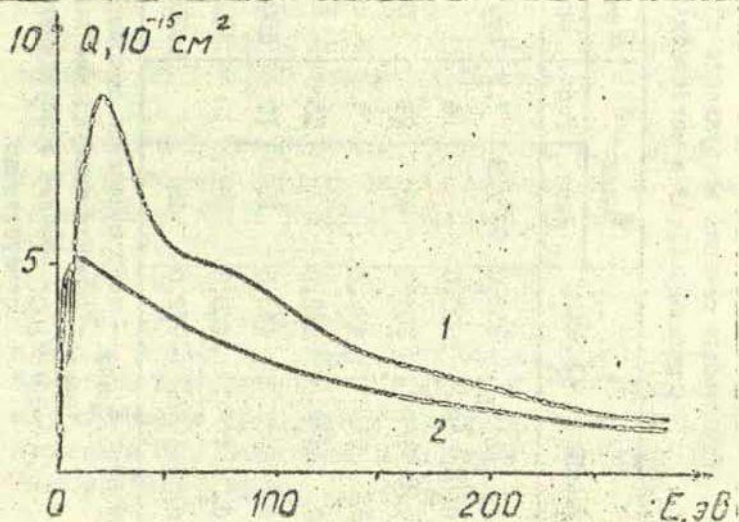


Рис. 6 Эффективные сечения возбуждения перехода $\lambda = 648,3$ нм (Ba $5^1D_2 - 6p^1F_3$), полученные экспериментально (1) и рассчитанные по [7] (2).

Таблица I

Эффективные сечения возбуждения спектральных переходов атома бария из
основного (1-3) и метастабильного (4-8) 5^1D_2 состояний

№ п/п	Переход	λ , нм	$E_{\text{макс}}$, эВ		$Q_{\text{макс}}$, 10^{-17} см ²		Q_{30} , 10^{-17} см ²		Q_{200} , 10^{-17} см ²	
			Эксп.	Расч.	Эксп.	Расч.	Эксп.	Расч.	Эксп.	Расч.
1	$6^1S_0 - 6^1P_1^*$	553,5	17*/23	7,5	290*	1800	250*/250	1200	77*/53	400
2	$5^1D_2 - 6^1P_1^*$	1500,0		4		70		40		12
3	$6^1S_0 - 7^1P_1^*$	307,2	43	24	0,8	0,42	0,71	0,42		0,26
4	$5^1D_2 - 7^1P_1^*$	472,6		9		0,58		0,47		0,16
5	$5^1D_2 - 6p^1P_1$	582,6		15		780		700		850
6	$5^1D_2 - 6p^1F_3$	648,3	18	10	850	510	620	440	200	180
7	$5^1D_2 - 4^1F_3$	428,3	18		480		410		130	
8	$5^3D_1 - 6p^1D_2$	712,0	18		1020		700		240	

Обозначения: $E_{\text{макс}}$ - энергетическое положение максимума сечения возбуждения линии;

$Q_{\text{макс}}$ - сечение возбуждения линии в максимуме;

Q_{30} , Q_{200} - сечения возбуждения линии при энергии электронов 30 и 200 эВ соответственно.

* Экспериментальные данные /8/.

и экспериментальные данные из работы /8/. На рис. 6 полученные экспериментальные результаты для перехода $5^1D_2 - 6p^1F_3$ сравниваются с расчетными /7/. Наблюдается вполне удовлетворительное согласие. Полученные в настоящей работе значения эффективных сечений возбуждения спектральных переходов атома бария из состояния 5^1D_2 на несколько порядков превосходят значения измеренных в работе /8/ сечений возбуждения тех же переходов из основного состояния.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

1. Шафранюш И.И., Алексахин И.С., Запесочный И.П. - Письма в ЖЭТФ, 1974, т. 19, вып. 5, с. 271-274.
2. Алексахин И.С., Загребин С.В., Озолиньш Д.А. и др. - В кн.: III Всесоюз. конф. по лазерам на основе сложных органических соединений и их применение. Ужгород, 10-12 сент. 1980 г. Минск, 1980, с. 64-65.
3. Алексахин И.С., Загребин С.В., Озолиньш Д.А. и др. - В кн.: VIII Всесоюз. конф. по физике электронных и атомных столкновений /VIII ВКЭАС/, Ленинград, 29 сент. - 2 окт. 1981 г. Л., 1981, с. 195.
4. Алексахин И.С., Загребин С.В., Запесочный И.П. и др. - В кн.: VIII Всесоюз. конф. по физике электронных и атомных столкновений /VIII ВКЭАС/, Ленинград, 29 сент. - 2 окт. 1981 г. Л., 1981, с. 196.
5. Allegri M., Alzetta G., Kopystynska A. et al. - Opt. Comm. 1976, vol. 19, N 1, p. 96-100.
6. Measures R.M. - J. Appl. Phys., 1977, vol. 48, p. 2673-2675.
7. Вайнштейн Л.А., Собельман И.И., Юков Е.А. Возбуждение атомов и уширение спектральных линий. М.: Наука, 1979. 167 с.
8. Алексахин И.С., Запесочный И.П., Гарга И.И. и др. - Опт. и спектр., 1975, т. 38, вып. 2, с. 228-235.

ИОНИЗАЦИОННЫЕ СТОЛКНОВЕНИЯ В ОПТИЧЕСКИ ВОЗБУЖДЕННЫХ ПУЧКАХ АТОМОВ МЕТАЛЛОВ

В последние годы процессы ионизации при атом-атомных столкновениях с участием возбужденных атомов щелочных металлов исследовались довольно интенсивно (см., например, /1/). В частности, для калия, рубидия и цезия были измерены константы скоростей и эффективные сечения процессов ассоциативной ионизации (АИ) при столкновениях оптически возбужденных nD -атомов с нормальными атомами. Расчеты, выполненные для цезия /2,3/, количественно хорошо согласуются с этими экспериментальными результатами. Эксперименты проводились в паронаполненной ячейке. Измерялся ток ионов, образующихся в результате столкновительных процессов ионизации при селективном оптическом возбуждении высоколежащих атомных состояний. Массовый анализ образующихся при этом ионов не проводился.

Однако химическая агрессивность многих элементов при высоких рабочих температурах, сложность регистрации заряженных частиц и проведение анализа по массам заряженных продуктов реакций существенно ограничивает возможности использования паронаполненной ячейки в исследованиях процессов ионизации при атом-атомных столкновениях.

Новые возможности для исследования процессов АИ открывает применение методики пересекающихся пучков, позволяющей проводить эксперименты в более чистых условиях. До настоящего времени распространено не вполне верное мнение, что в самом пучке роль столкновений пренебрежимо мала. На самом деле, как показывают расчеты, выполненные в работе

/4/, эффективность столкновительных процессов в атомном пучке существенно зависит от типа процесса, точнее, от того, какова зависимость эффективного сечения Q этого процесса от относительной скорости v сталкивающихся частиц. Так, при $Q \sim v^{-1}$, что, вообще говоря, характерно для беспороговой реакции химионизации, константы скоростей процессов в газонаполненной ячейке и эффузионном атомном пучке оказываются равными. Применение оптического возбуждения к атомному пучку при исследовании столкновительных процессов считается в настоящее время весьма перспективным направлением. Особенно это относится к изучению процессов ионизации, поскольку методика пучковых экспериментов наилучшим образом приспособлена для анализа и регистрации заряженных продуктов реакции. В качестве недостатка пучковой методики следует отметить невысокую плотность атомов в пучке по сравнению с паронаполненной ячейкой.

К настоящему времени нам известна лишь одна работа /5/, в которой процесс АИ исследовался с помощью методики пересекающихся атомного и лазерного пучков. Авторы наблюдали образование молекулярных ионов в результате парных столкновений резонансно-возбужденных ЗР-атомов натрия и определили эффективное сечение такого процесса.

В настоящей работе исследовались процессы ионизации при облучении пучка атомов металлов (Na, K, Rb, Ba) участком спектра ксеноновой лампы, селективируемого монохроматором.

Схема экспериментальной установки приведена на рис. 1. Эффузионный пучок атомов создавался нагреванием исследуемого металла в тигле. При этом концентрация атомов в зоне оптического возбуждения варьировалась в пределах $(5-10) \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3}$. Пары металла в рабочей камере вымораживались ловушкой, охлаждаемой жидким азотом.

Селекция возбуждающего излучения по длинам волн осуществлялась выделением участка сплошного спектра ксеноновой лампы ДкСл-3000 монохроматором СД, изготовленным в экспериментально-производственных мастерских НИИ Ленинградского университета с дифракционной решеткой Г200

штр/мм. Монохроматичность возбуждающего излучения $\Delta\lambda$ изменялась в пределах 0,24-0,03 нм в зависимости от условий эксперимента. Энергетические параметры излучения измерялись с помощью градуированных фотоэлементов Ф-7 или Ф-29, электрометрическим усилителем ИМТ-0,5, с выхода которого сигнал подавался на самопишущий потенциометр КСП-4. Источником питания лампы служил выпрямитель 50-ВУК-120, ток лампы в рабочем режиме составлял 60-90 А. Аналогичная методика оптического возбуждения использовалась ранее в

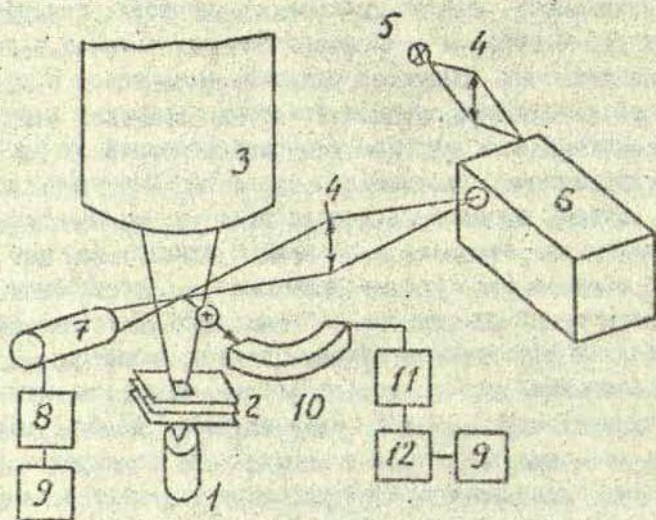


Рис. I. Схема экспериментальной установки:

1 - источник атомного пучка, 2 - формирующие диафрагмы, 3 - ловушка с жидким азотом, 4 - фокусирующие кварцевые линзы, 5 - ксеноновая лампа ДКСШ-2000, 6 - монохроматор СД, 7 - фотоэлемент (Ф-7, Ф-29), 8 - электрометрический усилитель ИМТ-0,5, 9 - самопишущий потенциометр КСП-4, 10 - вторично-электронный умножитель (ВЭУ-4, ВЭУ-6), 11 - дискриминатор, 12 - счетчик $fS - 3$.

работе /6/ при исследовании процессов АИ атомов щелочных металлов в условиях паронаполненной ячейки.

Образовавшиеся ионы регистрировались в режиме счета отдельных ионных импульсов. Система счета ионов включала в себя вторично-электронный умножитель (ВЭУ-4 или ВЭУ-6), дискриминатор и счетчик *FS-3* /7/. Выходной сигнал через аналоговый выход счетчика *FS-3* записывался на ленте самопишущего потенциометра КСП-4. Применение системы счета позволяло измерять в абсолютной мере число ионов, образующихся в экспериментальном объеме.

На рис. 2 представлена экспериментальная запись зависимости числа регистрируемых ионов N_i от длины волны излучения возбуждающего пучка атомов натрия. Отчетливо наблюдаются ионные сигналы, отвечающие прямой фотоионизации

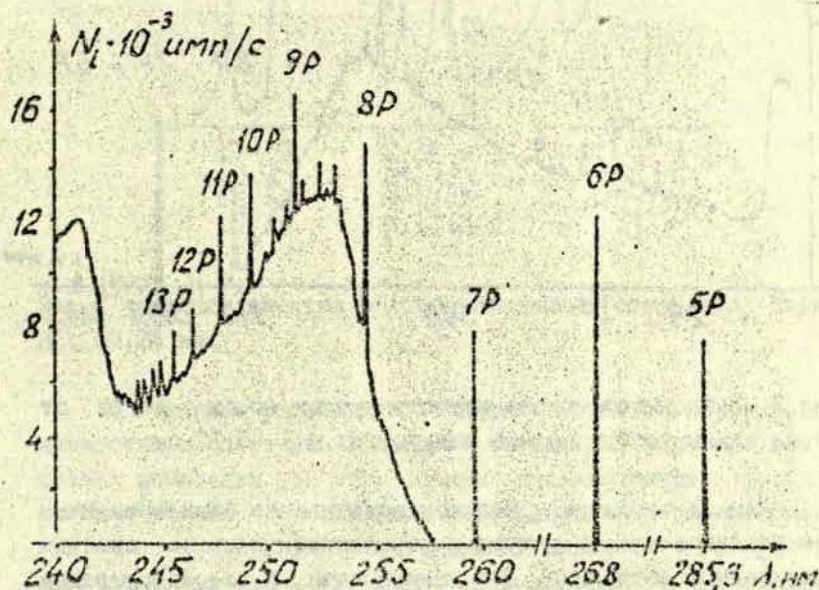


Рис. 2 Зависимость числа регистрируемых ионов натрия от длины волны возбуждающего излучения; спектральная ширина возбуждающего излучения $\Delta \lambda = 0,12$ нм.

атома Na ($\lambda_{\text{порог}} = 241,2$ нм) и молекулы Na_2 ($\lambda = 258-243$ нм), а также ионизационные пики, обусловленные столкзнительной ионизацией при оптическом возбуждении nP состояний. При $\Delta\lambda = 0,03$ нм ионные пики уверенно регистрируются до $n = 30$. В области максимума сигнала, обусловленного ионизацией молекулы, наблюдается структура ионного спектра молекулярной полосы.

Аналогичные зависимости были получены для калия и рубидия. Данные для калия приведены на рис.3.

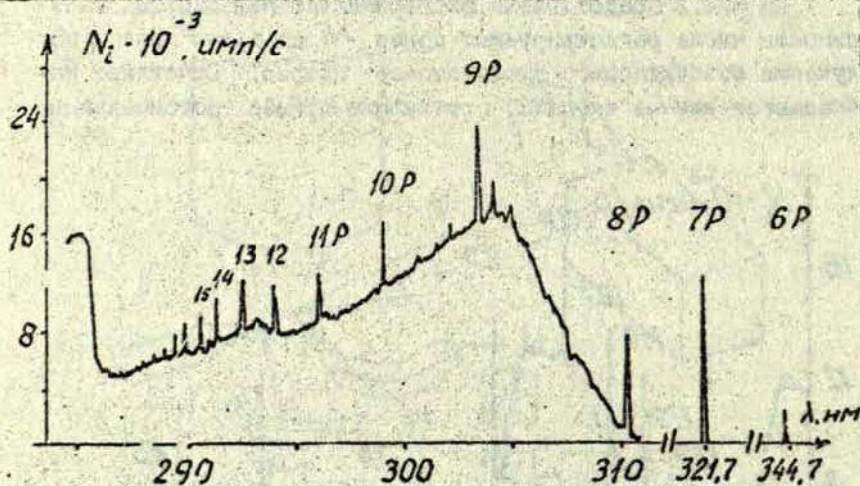


Рис.3 Зависимость числа регистрируемых ионов калия от длины волны возбуждающего излучения: $\Delta\lambda = 0,12$ нм.

Данная методика с успехом может также быть применена для исследования структуры и вероятности распада автоионизационных состояний. Для иллюстрации на рис.4 приведен участок ионного спектра бария, записанного нами в интервале 239-225 нм. Наблюдаемый спектр ионов, обусловленный распадом автоионизационных состояний, находится в хорошем согласии с результатами работы [8], в которой для получе-

ния паров бария использовалась ячейка "Heat pipe cell", а для регистрации заряженных частиц - метод компенсации объемного заряда.

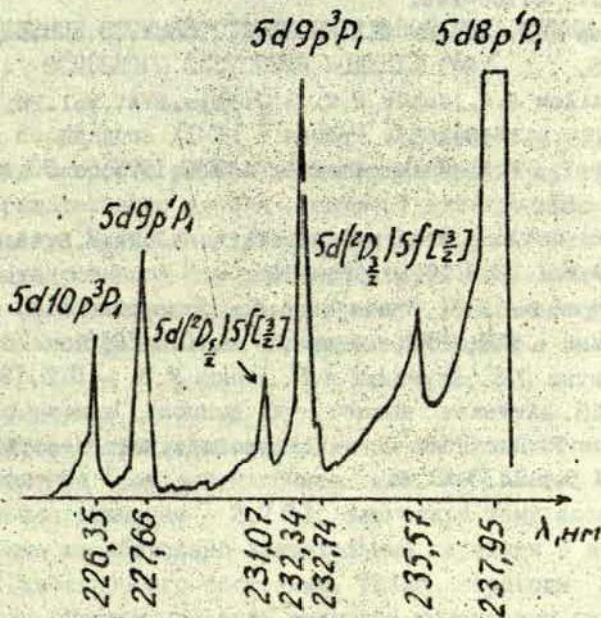


Рис. 4. Участок спектра автоионизационных состояний бария; $\Delta \lambda = 0,24$ нм.

Изложенные результаты свидетельствуют о широких возможностях использования данного метода для изучения процессов ионизации при атом-атомных столкновениях, фотоионизации атомов и молекул, для исследования автоионизационных состояний. Результаты измерений констант скоростей исследованных процессов будут опубликованы в ближайшее время.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

1. Ключарев А.Н. - В кн.: Химия плазмы. М.: Атомиздат, 1980, вып. 7, с. 109-144.
2. Думан Е.Л., Шматов И.П. - ЖЭТФ, 1980, т. 78, вып. 6, с. 2116-2125.
3. Mihailov A.A., Janev R.K. - J. Phys. B: At. Mol. Phys., 1981, vol. 14, p. 1639-1653.
4. Безуглов Н.Н., Ключарев А.Н. - ЖПС, 1979, т. 30, вып. 3, с. 549-551.
5. Andre de Jong, Fred van der Valk - J. Phys. B: At. Mol. Phys., 1979, vol. 12, N 18, p. L561-L566.
6. Девдариани А.З., Ключарев А.Н., Лазаренко А.В. и др. - Письма в ЖТФ, 1978, т. 4, вып. 17, с. 1013-1016.
7. Вилитис О.Е., Круминьш А.П., Янсон У.В. - ПЛЭ, 1982, вып. 3, с. 248.
8. Camus P., Morillon O. - J. Phys. B: At. Mol. Phys., 1977, vol. 10, N 5, p. L133-L136.

ОПРЕДЕЛЕНИЕ СЕЧЕНИЙ СТОЛКНОВИТЕЛЬНОЙ РЕЛАКСАЦИИ ОСНОВНОГО СОСТОЯНИЯ МОЛЕКУЛ NaK

Ранее сообщалось [1-3] о методе и результатах прямого измерения скорости термализации заселенности J' колебательно-вращательного уровня основного электронного состояния молекул K_2 по кинетике переходного процесса в лазерно-индуцированной флуоресценции (ЛИФ). В настоящей публикации сообщается о применении этого метода в изучении столкновительной релаксации основного состояния молекул NaK .

Гетероядерные щелочные двухатомные молекулы представляют интерес прежде всего наличием постоянного дипольного момента (который, например, для NaK имеет довольно большое значение - $2,7D$), благодаря чему возможны излучательные колебательно-вращательные переходы в пределах одного электронного состояния. Такие переходы могут существенным образом изменить скорость релаксации отдельного уровня (v' , J') основного электронного состояния. Кроме того, гетероядерные щелочные двухатомные молекулы перспективны как активная среда для создания перестраиваемых лазеров с оптической накачкой.

В последнее время объектом интенсивных исследований является молекула NaK , о которой накоплена весьма полная спектроскопическая информация. Для возбужденных состояний NaK методами ЛИФ уточнены электронные термы и спектроскопические константы [4-7], измерены времена жизни нескольких колебательно-вращательных уровней $D''\Pi$ -состояния [8]; интересные результаты о процессах передачи

энергии в $D^1\Pi$ - и $C^1\Pi$ -состояниях дали поляризационные измерения /9,10/. Методами ЛИФ /5,6/ и микроволнового оптического двойного резонанса /11/ уточнены спектроскопические константы в основном электронном состоянии молекулы NaK , но отсутствует какая-либо информация о столкновительных процессах. Поэтому представляется целесообразным использовать ранее разработанную методику измерения переходного процесса /1,3/ для определения скорости столкновительной релаксации в $X^1\Sigma^+$ -состоянии молекулы NaK .

Эксперименты проводились по методике, описанной в статье Р.С.Фербера, публикуемой в настоящем сборнике (с. 3). Экспериментальная установка более подробно описана в /2/. Источником излучения служил аргоновый ионный лазер ЛГ-69. Излучение лазера, модулированное прямоугольными импульсами (рис.4 в /3/), попадало в ячейку флуоресценции со смесью Na и K , возбуждая молекулы Na_2 и NaK . Это вызывает перекрывание спектров ЛИФ, затрудняя разрешение линий и расшифровку спектра. Проблема может быть частично решена приготовлением смеси с отношением масс K и Na 4:1, что дает оптимальную концентрацию NaK , которая примерно в 30 раз больше, чем концентрация Na_2 /8/. Для идентификации линий были рассчитаны ожидаемые спектры флуоресценции с использованием спектроскопических констант для Na_2 /12/ и NaK (*). Спектры затем сравнивались с экспериментально полученными с помощью монохроматора ДЭС-12 (0,5 нм/мм).

При возбуждении линией 514,5 нм аргонового лазера мощностью 400 мВт в качестве рабочего был выбран идентифицированный переход $(v' = 5, J' = 67) X^1\Sigma^+ - (v'' = 1, J'' = 67) D^1\Pi$. Монохроматором выделялась линия флуоресценции Q_{13} , на которой проводились измерения кинетики ЛИФ. На рис. 1 показан экспериментально снятый задний фронт импульса флуоресценции. По данным /8/, скорость спонтанного распада

* Данные о NaK были любезно представлены В.Демтредером (ДТ).

да (1,67) D^I составляет $5 \cdot 10^7 \text{ с}^{-1}$, а скорость поглощения в условиях эксперимента порядка 10^6 , что позволяет записать временную зависимость интенсивности флуоресценции $I_{\text{фл}}$, возбужденной ослабленным в момент времени $t = t_0$ лазерным лучом (подробнее о правомерности записи $I_{\text{фл}}$ в /13/, как

$$I_{\text{фл}}(t-t_0) = I(\infty) - [I(\infty) - I(0)] e^{-j(t-t_0)} \quad (I)$$

где $I(0)$ и $I(\infty)$ - значения $I_{\text{фл}}(t-t_0)$ при $t-t_0$ и $t-\infty$ (рис.4в /3/).

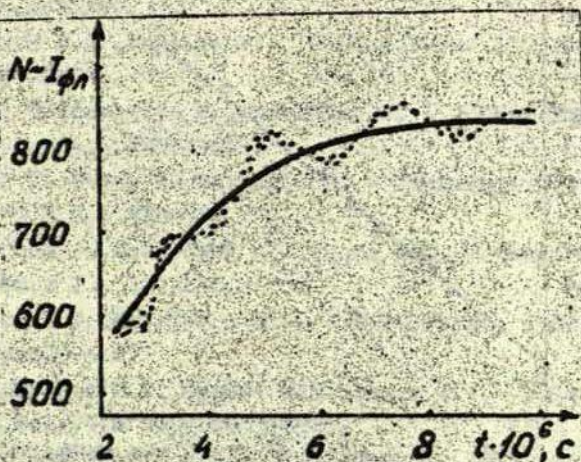


Рис.1. Временная зависимость заднего фронта импульса флуоресценции: (....) число импульсов, зарегистрированное анализатором, — рассчитанная по (I) кривая, $j^t = 0,75 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$.

Из (I) можно непосредственно определить j^t . Полученные таким образом значения скорости релаксации j^t при $T=461 \pm 1 \text{ К}$ в зависимости от концентрации аргона N_{Ar} представлены на рис.2. Наклон прямой на графике позволяет оп-

ределить усредненное суммарное эффективное сечение термализирующих соударений $\langle \sigma(\text{NaK}-\text{Ar}) \rangle$ ($5,67$) $\times 10^{-14}$ см^2 -состояния молекулы NaK атомами Ar , предполагая

$$\gamma = \gamma_0 + \langle \sigma(\text{NaK}-\text{Ar}) \rangle \bar{u} N_{\text{Ar}}, \quad (2)$$

где \bar{u} - усредненная по максвелловскому распределению относительная скорость сталкивающихся партнеров, γ_0 - скорость пролетной релаксации.

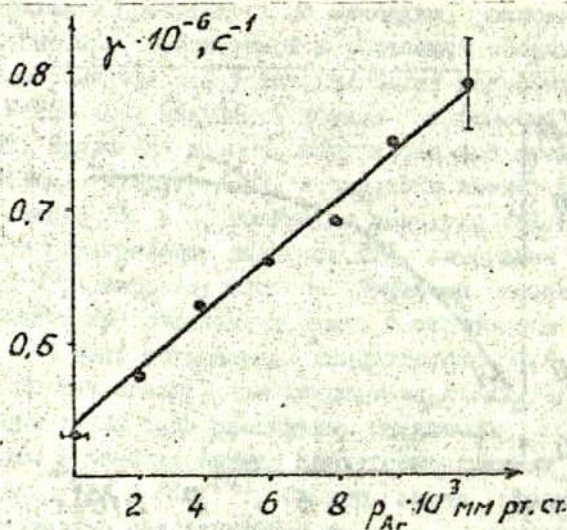


Рис. 2. Зависимость скорости релаксации уровня ($v^1/5, J^1=67$) $\gamma^1 \Sigma^+$ -состояния молекулы NaK от давления примесного газа Ar .

Полученное значение сечения $\langle \sigma(\text{NaK}-\text{Ar}) \rangle = 1 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ оказалось весьма близким к ранее измеренным значениям сечений для Na_2 : $\langle \sigma(\text{Na}_2-\text{Ar}) \rangle = (1,59 \pm 0,10) \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ /14/ и K_2 : $\langle \sigma(\text{K}_2-\text{Ar}) \rangle = (1,54 \pm 0,19) \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ /2/.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- I. Аузиньш М.П., Пирагс И.Я., Фербер Р.С. и др. - Письма в ЖЭТФ, 1980, т.31, вып. 10, с.589-592.
2. Аузиньш М.П., Пирагс И.Я., Фербер Р.С. и др. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов /Под ред. Э.К. Краулинь. Рига:ЛГУ им.П.Стучки, 1981, с.50-56.
3. Фербер Р.С. - Настоящий сборник, с. 3-27.
4. Allegrini M., Moi L., Arimondo E. - Chem.Phys.Lett., 1977, vol.45, N 2, p.245-249.
5. Breford E.J., Engelke F. - Chem.Phys.Lett., 1978, vol.53, N 2, p.282-287.
6. Breford E.J., Engelke F. - J.Chem.Phys., 1979, vol.71, N 5, p.1994-2004.
7. Eisel D., Zevgolis D., Demtröder W. - J.Chem.Phys., 1979, vol.71, N 5, p.2005-2011.
8. Pfaff J., Stock M., Zevgolis D. - Chem.Phys.Lett., 1979, vol.65, N 2, p.310-315.
9. McCormac J., McCaffery A.J., Rowe M.D. - Chem.Phys., 1980, vol.48, N 1, p.121-130.
10. McCormac J., McCaffery A.J. - Chem.Phys., 1980, vol.51, N 3, p.405-416.
11. Worgasbecher R.F., Hessel M.M., Lovas F.J. - J.Chem.Phys., 1981, vol.74, N 12, p.6983-6985.
12. Demtröder W., Stock M. - J.Mol.Spectr., 1975, vol.55, N 1 - 3, p.476-486.
13. Суворов А.Е., Аузиньш М.П., Пирагс И.Я. и др. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов /Под ред. Э.К. Краулинь. Рига:ЛГУ им.П.Стучки, 1981, с.42-49.
14. König F., Weber H.G. - Chem.Phys., 1980, vol.45, N 1, p.91-100.

Я.Э. Рупкус, Э.К. Краулин,
ЛГУ им. П. Стучки
(Рига)

ПРОЦЕССЫ ОБРАЗОВАНИЯ МЕТАСТАБИЛЬНЫХ АТОМОВ И МОЛЕКУЛ ПРИ ИМПУЛЬСНОМ ФОТОВОЗБУЖДЕНИИ ПАРОВ ДИБРОМИДА СВИНЦА

Элементарные процессы, вызываемые облучением ультрафиолетовым светом (УФ) паров дибромидов свинца, изучались в работах /1-4/. В результате этих исследований установлено, что фотовозбуждение молекул $PbBr_2$ инициирует различные по физической природе первичные и вторичные фотохимические процессы, в результате которых образуются возбужденные атомы и молекулы с различными временами жизни.

Из работ /3,4/ вытекает, что в условиях оптического возбуждения молекул $PbBr_2$ образование метастабильных атомов свинца происходит по двум основным каналам - в результате фотодиссоциации невозбужденных молекул $PbBr_2$ и в результате взаимных столкновений метастабильных молекул $PbBr_2$. Эти два канала отчетливо различаются по спектральному составу и длительности атомарных послесвечений. В настоящей работе были проведены эксперименты по импульсному фотовозбуждению молекул $PbBr_2$ с целью более детального изучения процессов образования метастабильных атомов свинца и молекул дибромидов свинца.

Исследования проводили на установке для высокой температурного импульсного фотолитза, которая использовалась в работах /3,4/ и описана в работе /5/. На рис. 1 показаны системы возбуждения паров и регистрации метастабильных атомов и атомарного и молекулярного послесвечения. Импульсное облучение паров дибромидов свинца осуществлялось в цилиндрической камере (К) длиной 50,5 см и диаметром 2,35 см. В качестве источника возбуждающего УФ-излучения исполь-

действие внешнего магнитного поля H : $\Omega = g_b \mu_0 H / \hbar$ и $\omega = g_a \mu_0 H / \hbar$ есть частоты магнитного расщепления основного и возбужденного уровней.

Решение (I) даёт возможность записать через моменты I_a^k экспериментально наблюдаемую величину - интенсивность ЛФ с поляризацией \vec{e}' на некотором переходе $a \rightarrow c$ из прогрессивной флуоресценции. В асимптотическом пределе $J \rightarrow \infty$

$$I(\vec{e}') \sim (-1)^\Delta \sum_k C_{1\Delta}^{k0} \sum_a (-1)^a f_a^k \Phi_{-a}^k. \quad (3)$$

Перейдем к рассмотрению реализованных в /1-19/ конкретных случаев оптической накачки.

3. Стационарное возбуждение

Рассмотрим случай стационарного возбуждения $\Gamma_p = const$, приводящего к $f_a^k = \varphi_q^x = 0$. Тогда (I) есть система линейных уравнений общего числом до $(2J'+1)^2 + (2J'+1)^2$. И хотя, учитывая $f_{-a}^k = (-1)^a (f_a^k)^*$, $\varphi_{-q}^x = (-1)^q (\varphi_q^x)^*$ (см. /20/), число независимых неизвестных уменьшается, численное решение системы при $J', J'' \sim 100$ чрезвычайно затруднительно. Пути алгоритмизации задачи, а также возможности обрезания системы для рангов X, K , больших некоторого предела, проанализированы в работе М.П. Лузиньша, находящейся в печати. Практически численное решение (I) выполнено в /18/ в предположении $\varphi_q^x = f_a^k = 0$ для $K, X \leq 6$.

Несколько иным подходом к решению (I) является разложение в ряд по параметру Γ_p / Γ_x , позволяющее в некоторых простых случаях получить аналитическое выражение для φ_q^x и f_a^k . Рассмотрим наиболее простой случай отсутствия магнитного поля $H=0$ (т.е. $\omega = \Omega = 0$) при возбуждении линейно поляризованным светом. Ось квантования в этом случае можно выбрать вдоль светового вектора \vec{E} , что при-

линейного поглощения от источника атомарного спектра свинца (А) через кювету фотолиза пропускали свет, и кварцевой линзой (Л) фокусировали его на входную щель монохроматора (М) фирмы "Карл Цейс Йена" SPМ-2, а электрический сигнал от фотоэлектронного умножителя (Ф) ФЭУ-39 подавали на осциллограф (О) СІ-30. Для фотоэлектрической регистрации атомарного и молекулярного послесвечения зондирующий луч перекрывали диафрагмой (Д).

Вид отдельных сигналов поглощения и послесвечения, записанных с экрана осциллографа, показан на рис. 2.

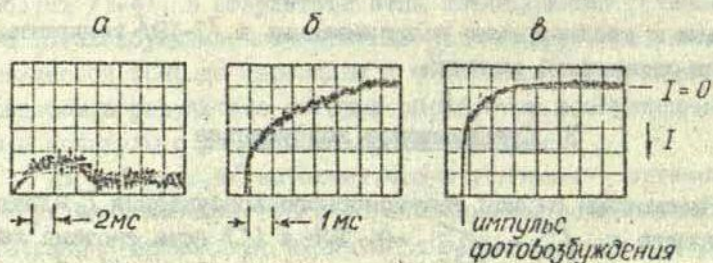


Рис. 2 Осциллограммы поглощения атомарной линии 405,8 нм (а), послесвечения атомарной линии 405,8 нм (б) и послесвечения молекулярной полосы 467,3 нм (в).

$$P_{\text{Xe}} = 1,3 \text{ мм рт. ст.}; P_{\text{PbVr}_2} = 3 \cdot 10^{-5} \text{ мм рт. ст.}$$

Колоколообразная форма сигнала атомарного поглощения (рис. 2а) обусловлена наложением сигнала атомарного послесвечения. Поэтому, чтобы отделить поглощение от послесвечения и определить абсолютную концентрацию метастабильных атомов свинца, эти сигналы снимали при одинаковых параметрах регистрирующей части. Абсолютную концентрацию метастабильных атомов $\text{Pb}^{3\text{P}}_{1,2}$ определяли по поглощению линии 388,3 и 405,8 нм, используя значения силы осцилляторов, приведенное в работе [7], точность определения концентрации была не ниже 1%. Концентрацию метастабильных атомов $\text{Pb}^{1\text{D}}_2$ оценивали по поглощению линии 373,9 нм с использованием

значений силы осциллятора из работы /8/.

По осциллограммам (рис. 25, в) определяли относительную интенсивность атомарного и молекулярного послесвечения.

Потом по временным зависимостям абсолютной концентрации метастабильных атомов свинца и временным зависимостям относительной интенсивности послесвечения изучали процессы импульсного фотоллиза и определяли их характеристики.

При облучении в широкой области спектра паров дибромидом свинца УФ-светом ксеноновой импульсной лампы, приблизительно 50% излучения которой, по данным работы /9/, приходится на область спектра 165-250 нм, возбуждаются как отталкивательные, так и устойчивые электронные состояния молекулы $PbBr_2$ /1, 3, 4/. Возбуждение отталкивательного состояния приводит к фотодиссоциации молекулы $PbBr_2$ по каналу $PbBr + Br$ (рис. 3а). Последующая фотодиссоциация молекулы $PbBr$ приводит к образованию резонансно-возбужденных атомов свинца, которые, излучая квант света, переходят в метастабильные состояния (рис. 3б). Возбуждение устойчивого электронного состояния приводит к заселению нижнего триплетного состояния 3V_1 за счет релаксации электронной энергии возбуждения внутри молекулы $PbBr_2$ (рис. 3в).

Для описания процессов, изображенных на рис. 3, использовали следующие данные. Энергию отталкивательных электронных состояний молекул $PbBr_2$ и $PbBr$ оценивали, исходя из анализа спектров фотодиссоциации молекулы $PbBr_2$ /1, 3/ и расчета энергии термической диссоциации молекул $PbBr_2$ и $PbBr$ /10/. Потенциальные кривые молекулы $PbBr$ заимствованы из работы /11/. Энергию устойчивых электронных состояний 1A_1 и 3V_1 оценивали на основании сравнения спектров поглощения молекул дигалогенидов подгруппы углерода /12, 13/ и электронной структуры данных молекул, рассчитанной методом молекулярных орбиталей Хюккеля /13/.

Процессы, показанные на рис. 3, происходят во время фотовозбуждения молекул $PbBr_2$. После фотовозбуждения электронно-колебательно-возбужденные метастабильные молекулы

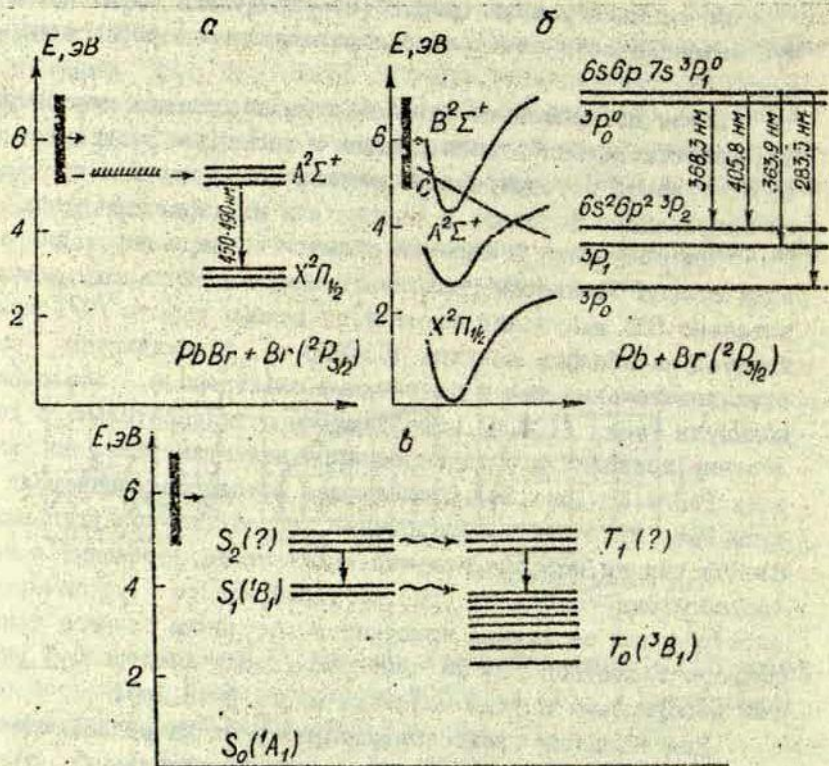
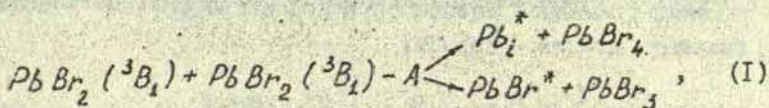


Рис. 3. Переходы при возбуждении отталкивательных электронных состояний молекулы $PbBr_2$ (а) и молекулы $PbBr$ (б) и устойчивых электронных состояний молекулы $PbBr_2$ (в). ----- диссоциация; ———— излучательный переход; ~~~~~ безызлучательный переход.

Черной полосой отмечена энергия квантов возбуждающего света.

$PbBr_2(^3B_1)$ могут участвовать в следующем предположительном процессе:



где вследствие распада столкновительного комплекса А образуются высоковозбужденные атомы свинца Pb_i^* и резонансно-возбужденные молекулы $PbBr^*$. Высоковозбужденные атомы свинца Pb_i^{3P} , излучая квант света (атомарное послесвечение), далее переходят в метастабильное состояние, а молекула $PbBr^*$, излучая молекулярную полосу 467,3 нм (молекулярное послесвечение), переходит в основное состояние. Приблизительная энергетическая диаграмма и ход реакции (I) показаны на рис. 4.

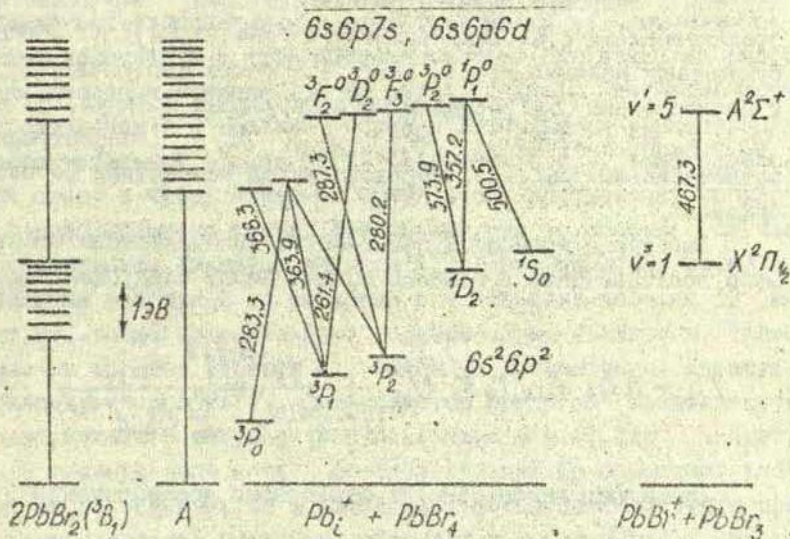


Рис. 4 Энергетическая диаграмма реакции (I).

Из уравнений баланса, которые описывают упомянутые выше процессы (рис. 3а, б, в и рис. 4), получили следующее вы-

ражение временной зависимости концентрации (см^{-3}) метастабильных атомов свинца:

$$N = e^{-ct} \int_0^t e^{ct} \left(\sum_{i=1}^l \frac{A_{ik} \tau_{pi} K_i N_{oi}^2 (e^{-a_i t})^2}{(1 + \frac{K_i N_{oi}}{a_i} - \frac{K_i N_{oi}}{a_i} e^{-a_i t})^2} \right) dt + N_{oa} e^{-ct}, \quad (2)$$

где l - число переходов с верхних возбужденных уровней Pb_i^* атома свинца на данном метастабильном уровне (рис. 4); N_{oa} - концентрация метастабильных атомов, образовавшихся вследствие фотодиссоциации; c - константа скорости первого порядка, характеризующая распад метастабильного атома; A_{ik} - вероятность радиационного перехода в атоме свинца; τ_{pi} - радиационное время жизни высоковозбужденного атома свинца Pb_i^* ; K_i - константа скорости реакции (I); a_i - константа скорости первого порядка, которая определяется столкновениями с атомами инертного газа ($k_M [M]$) и невозбужденными молекулами ($k [PbBr_2]$), а также диффузным ($1/\tau_{diff}$) и радиационным (A_p) распадом метастабильных молекул, т. е. $a_i = k_M [M] + k [PbBr_2] + \frac{1}{\tau_{diff}} + A_p$; N_{oi} - концентрация метастабильных молекул, образовавшихся вследствие фотовозбуждения.

Выражение временной зависимости интенсивности атомарного послесвечения с единицы объема имеет следующий вид:

$$I_{ik} = h \nu_{ik} A_{ik} \tau_p K_i N_{oi} \frac{(e^{-a_i t})^2}{(1 + \frac{K_i N_{oi}}{a_i} - \frac{K_i N_{oi}}{a_i} e^{-a_i t})^2}. \quad (3)$$

Суммарная интенсивность атомарного послесвечения

$$I_{\Sigma} = \int_0^{\infty} I_{ik} dt = \frac{h \nu_{ik} A_{ik} \tau_p K_i N_{oi}^2}{k_M [M] + k [PbBr_2] + \frac{1}{\tau_{diff}} + A_p}. \quad (4)$$

Выражение временной зависимости интенсивности моле -

кулярного послесвечения с единицы объема имеет следующий вид:

$$I_M = h\nu_{\text{мол}} A_{\nu'\nu''} K_i \frac{N_{0i}^2 (e^{-a_i t})^2}{(1 + \frac{K_i}{a_i} - \frac{K_i}{a_i} N_{0i} e^{-a_i t})^2}, \quad (5)$$

где $A_{\nu'\nu''}$ — вероятность излучения молекулярной полосы 4673 нм в молекуле $RbBr$.

Константы процессов импульсного фотоллиза определяли, сравнивая экспериментальные кривые с кривыми, полученными по формулам (2)–(5). Кроме того, сравнение этих кривых дало возможность получить дополнительную информацию о процессах образования метастабильных атомов и молекул.

Экспериментальные зависимости подтверждают, что заселение метастабильных состояний происходит по двум каналам — фотодиссоциации и столкновения молекул. Как видно из рис. 5, при давлении ксенона 1,8 мм рт.ст., когда интенсивность послесвечения наибольшая (кривая 3), максимум концентрации метастабильных атомов $Rb^3P_{I,2}$ (кривые 5 и 7) наблюдается не сразу, а через какое-то время после пропускания импульса возбуждающего света. Это значит, что в данном случае определяющим является процесс (1) — столкновения метастабильных молекул. В то же время при давлении ксенона 12 мм рт.ст., когда интенсивность послесвечений снижается более чем на порядок (кривая 3), максимум концентрации метастабильных атомов $Rb^3P_{I,2}$ наблюдается сразу за прохождением возбуждающего импульса света (кривые 4 и 6). Это значит, что главную роль играет фотодиссоциация. На основании расчетов, проведенных по формуле (2), можно заключить, что при низком давлении инертного газа вклад реакции (1) в заселение метастабильных атомов $Rb^3P_{I,2}$ сравним с вкладом процессов фотодиссоциации (соответственно кривые 5, 7 и 4, 6), а при высоком давлении инертного газа заселение метастабильных атомов возможно только в процессе фотодиссоциации.

Предположение, что процесс фотодиссоциации происходит

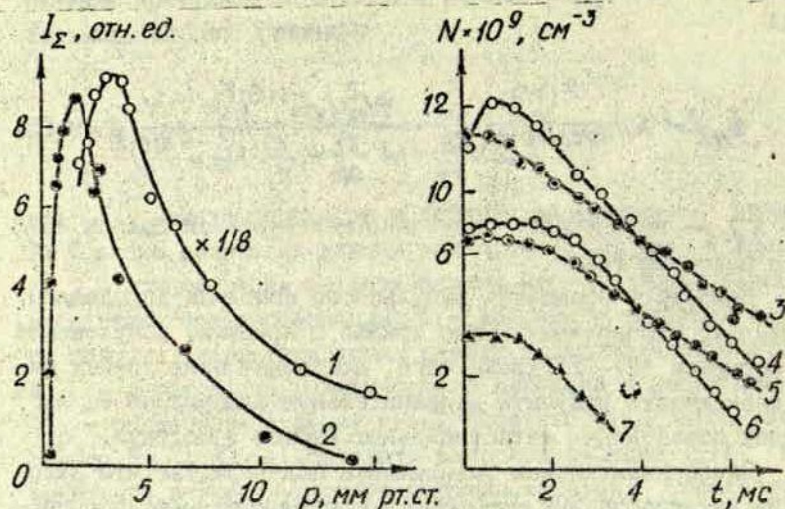


Рис. 5 Зависимость суммарной интенсивности послесвечения атомарной линии 405,8 нм (а) и временной зависимости абсолютной концентрации метастабильных атомов свинца (б) от давления инертного газа при $P_{\text{PbBr}_2} = 3 \cdot 10^{-5}$ мм рт.ст.:

1 - эксперимент с Ar; 2 - эксперимент с Xe; 3, 4 - концентрация атомов Pb^3P_1 ; 5, 6 - концентрация атомов Pb^3P_2 ; 7 - концентрация атомов Pb^1D_2 . 3, 5 - $P_{\text{Xe}} = 12$ мм рт.ст.; 4, 6, 8, 7 - $P_{\text{Xe}} = 1,8$ мм рт.ст.

по схеме, изображенной на рис. 3а, б, подтверждается отношением концентрации метастабильных атомов, образовавшихся при фотодиссоциации. Экспериментальное отношение концентрации метастабильных атомов свинца Pb^3P_1 и Pb^3P_2 после возбуждения при высоком давлении инертного газа равно $1,95 \pm 0,25$, что хорошо согласуется с расчетным значением 1,96. Это значение мы получили, применив схему 3б, т.е. по данным о заселенности резонансных уровней свинца $^3\text{P}_{0,1}^0$ и по

значениям сил осцилляторов, приведенным в работе /7/, определяли заселенность метастабильных уровней $^3P_{1,2}$.

Метастабильный уровень свинца Pb^{1D_2} наблюдали только при малых давлениях инертного газа (рис. 5, кривая 8). Это значит, что он заселяется преимущественно в реакции (I).

Заселение метастабильного уровня I_{S_0} в нашем эксперименте не обнаружено.

Подробнее процесс (I) изучали по экспериментально полученным временным зависимостям относительной интенсивности послесвечения (рис. 6). Прежде всего необходимо было доказать, что послесвечение вызывают столкновения электронно-колебательно-возбужденных молекул $PbBr_2$ (3B_1). Этого можно

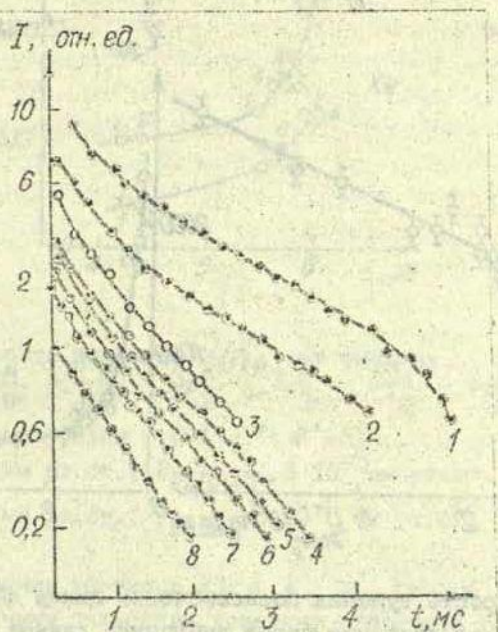


Рис. 6 Временные зависимости интенсивности атомарного послесвечения (1 - 405,8 нм; 2 - 366,3 нм; 4 - 287,3 нм; 5 - 280,2 нм; 6 - 261,4 нм; 7 - 357,2 нм; 8 - 373,9 нм) и молекулярного послесвечения (3 - 477,3 нм).

$P_{Xe} = 1,3$ мм рт. ст., $P_{PbBr_2} = 1,2 \cdot 10^{-5}$ мм рт. ст.

было добиться, изучая скорость тушения послесвечения или, другими словами, изучая дезактивацию молекул $PbBr_2(^3B_1)$ - см. формулы (3) и (5). Константы дезактивации молекулы $PbBr_2(^3B_1)$ с эффективным временем жизни послесвечения $\tau_{эф}$ связаны соотношением

$$\frac{1}{\tau_{эф}} = k_M [M] + k [PbBr_2] + \frac{1}{\tau_{эф}} + A_p \quad (6)$$

Значения $\tau_{эф}$ находили по экспоненциальной части кривых рис. 6, по формуле (6) определяли теоретическую зависимость тушения послесвечения ($1/\tau_{эф}$) от давления паров дибромид свинца и инертного газа.

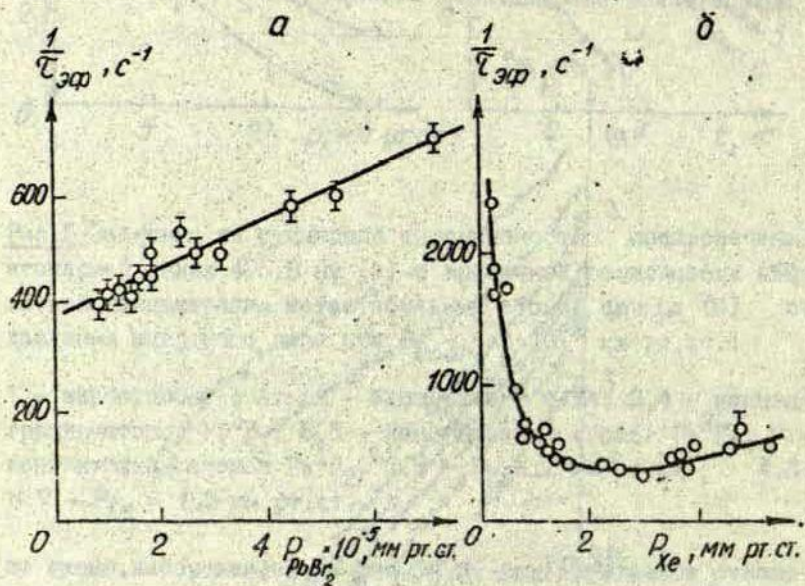


Рис. 7. Скорость тушения послесвечения линии 405,8 нм в зависимости от давления паров дибромид свинца (а) и инертного газа (б): а - $P_{He} = 1,3$ мм рт.ст., б - $P_{PbBr_2} = (0,5-3) \cdot 10^{-5}$ мм рт.ст.
 (Кружки - экспериментальные точки, линия - теоретическая зависимость (6)).

Экспериментальные зависимости $1/\tau_{эф}$ линии послесве-

чения 405,8 нм от давления паров дибромид свинца и инертного газа приведены на рис. 7. По экспериментальным кривым и соотношению (6) методом наименьших квадратов определяли константы столкновительной дезактивации $k_M = (3,0 \pm 0,5) \cdot 10^{-15} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ и $k = (1,7 \pm 0,2) \cdot 10^{-10} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$, коэффициент диффузии метастабильной молекулы $D = (0,083 \pm 0,006) \text{ см}^2 \cdot \text{с}^{-1}$ ($P_0 = 760 \text{ мм рт. ст.}$), вероятность радиационного распада метастабильной молекулы $\Lambda_p \ll 45 \text{ с}^{-1}$.

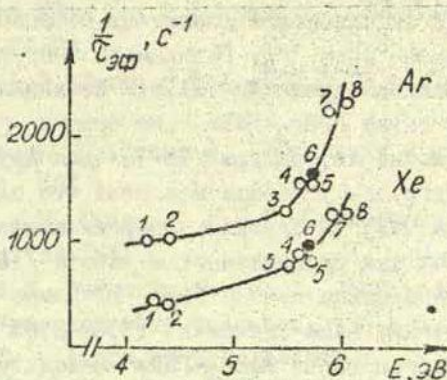


Рис. 8 Зависимость величины $1/\tau_{эф}$ от энергии атомарных уровней (1- 3P_0 ; 2- 3P_1 ; 3- 3F_2 ; 4- 3F_3 ; 5- 3D_2 ; 7- 3P_2 ; 8- 1P_1) и молекулярного уровня $6-A^2\Sigma^+(\nu'=5)$.

$$P_{Xe} = 1,3 \text{ мм рт. ст.}; P_{PbBr_2} = 1,3 \cdot 10^{-5} \text{ мм рт. ст.}$$

$$P_A = 4,8 \text{ мм рт. ст.}; P_{PbBr_2} = 3 \cdot 10^{-5} \text{ мм рт. ст.}$$

Числовые значения констант k_M и k по своему порядку близки к типичным значениям констант скоростей релаксации колебательной энергии в столкновениях с атомами инертных газов и многоатомными молекулами [14]. То, что константы k_M и k характеризуют именно колебательную релаксацию метастабильной молекулы $PbBr_2(^3B_1)$, показывают также кривые на рис. 8. Увеличение значения $1/\tau_{эф}$ с ростом энергии атомарного уровня при постоянной давлении паров дибромид свинца

ца и инертного газа можно объяснить только увеличением констант k_M и k - см. формулу (6). Изменение констант k_M и k является следствием увеличения вероятности дезактивации колебательной энергии из-за ангармонизма колебаний для молекул, возбуждающих в реакции (I) уровни свинца, находящиеся выше резонансных.

Из зависимостей, приведенных на рис. 8, следует еще один важный вывод, который подтверждает, что процесс (I) имеет место. Значение $1/\tau_{эф}$ молекулярного уровня $A^2\Sigma^+(v'=5)$ в пределах ошибок эксперимента совпадает со значением $1/\tau_{эф}$ атомарных уровней $3D_2^0$ и $3F_3^0$. Разница их энергий составляет 3,02-3,05 эВ. Согласно реакции (I), эта величина должна быть равной энергии связи $PbBr_3-PbBr$, но прямых подтверждений этого нет. Однако из литературы [15-16] для других молекул галогенидов подгруппы углерода известно, что энергия связи тетрагалогенида MX_3-X близка к энергии связи дигалогенида $MX-X$. Так как рассчитанное в работе [10] значение энергии связи дибромида свинца $PbBr-Br$ равно 2,63 эВ и близко к полученным нами значениям (3,02-3,05 эВ), можно принять, что энергия связи $PbBr_3-PbBr$ находится в этом интервале значений.

Сказанное выше подтверждает существование молекул $PbBr_2(^3B_1)$ в наших экспериментальных условиях. Что касается вопроса, каким путем создается метастабильное состояние 3B_1 в молекуле $PbBr_2$, то, к сожалению, строгое обоснование этого явления дать нельзя, поскольку неизвестна точная электронная структура молекулы $PbBr_2$. Косвенно нами доказано, что уровень 3B_1 заселяется не по пути $S_0-S_2-S_1 \rightsquigarrow T_0$, а по пути $S_0-S_2 \rightsquigarrow T_1-T_0$ (рис. 3в), однако это требует дальнейших теоретических и экспериментальных исследований.

Усредненное значение константы скорости K_I реакции (I) по всем колебательным состояниям молекулы $PbBr_2(^3B_1)$ имеет значение равное или большее $1 \cdot 10^{-11} \text{ см}^3 \cdot \text{с}^{-1}$. Это означает, что реакция (I) происходит практически при каждом столкновении метастабильных молекул.

С п и с о к . л и т е р а т у р ы

1. Роров В. - Acta Physicochim., 1936, vol. 14, N 1, p. 159-168.
2. Рупкус Я. Э., Убелис А. П. - В кн.: Сенсбилизированная флуоресценция смесей паров металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1979, с. 98-109.
3. Nemati H., Collins J. G. - IEEE J. Quant. Electr., 1980, vol. QE-16, N 6, p. 594-596.
4. Рупкус Я. Э. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов / Под ред. Э. К. Краулинь. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1981, с. 84-97.
5. Убелис А. П., Силиньш Ю. А. - ЖПС, 1979, т. 31, вып. 4, с. 755 - 757.
6. Кубашевский О., Эванс Э. Термохимия и металлургия. М.: ИЛ, 1954. 364 с.
7. Пенкин Н. П., Славенас И. Д. Ю. - Опт. и спектр., 1963, т. 15, вып. 2, с. 154-165.
8. Lotman J., Guern Y., Cariou J., Johannin-Gilles A. - J. Quant. Spectr. Radiat. Transfer, 1979, vol. 21, N2, p. 143-146.
9. Басов Д. Р., Болдырев С. А., Гаврилова Л. И. и др. - Квант. электр., 1975, т. 2, № 8, с. 1840-1846.
10. Бутков К. В. - ЖЭТФ, 1933, т. 3, вып. 5, с. 381-401.
11. Wieland K., Newburgh R. - Helv. Phys. Acta, 1952, vol. 25, p. 87-106.
12. Margulecu J. G., Eugeniu Ivana - Rev. Roum. de Chimie, 1973, vol. 18, N 10, p. 1667-1680.
13. Hastie J. W., Hauge R. M., Margrove J. L. - J. Mol. Spectr., 1969, vol. 29, N 2, p. 152-162.
14. Смирнов Б. М., Палкина Л. А., Елецкий А. В. Явления переноса в слабоионизированной плазме. М.: Атомиздат, 1975, с. 69.
15. Ling-Fui Wang L., Margrove J. L., Franklin J. L. - J. Chem. Phys., 1974, vol. 61, N 4, p. 1357-1360.
16. Ling-Fui Wang L., Margrove J. L., Franklin J. L. - J. Chem. Phys., 1974, vol. 60, N 5, p. 2153-2162.

В.А.Круглевский
ЛГУ им.П.Стучки
(Рига)

НИЗКОЛЕЖАЩИЕ ТЕРМЫ ${}^3\Sigma_g^+$ МОЛЕКУЛЫ K_2

В последнее время при исследовании процессов заселения атомных и молекулярных состояний в лазерно-возбужденных парах калия /I/ обнаружены процессы, связанные с переходами между малоизученными триплетными состояниями димера калия. Была обнаружена слабая сплошная полоса с максимумом при 572,5 нм, высвечивание которой может быть объяснено переходом между ${}^3\Sigma_g^+$ -состоянием, коррелирующим с атомными состояниями $4S$ и $5S$, и ${}^3\Sigma_u^+$ -состоянием, образованным атомами в основном состоянии.

Несмотря на то что имеется немало теоретических расчетов как основных, так и возбужденных состояний димеров калия, насколько известно, отсутствуют расчеты термов симметрии ${}^3\Sigma_g^+$, коррелирующих с $K(4S) + K(5S)$, а также более высокими атомными состояниями, что затрудняло интерпретацию упомянутых процессов. В настоящем сообщении делается попытка рассчитать эти термы методом Гайтлера-Лондона с использованием псевдопотенциала Гельмана.

Известно, что химические свойства атомов в значительной степени определяются электронами валентной оболочки, поэтому в молекулярных расчетах оказываются полезными модели, в которых в явном виде рассматриваются только валентные электроны. Электроны остова при подобном подходе учитываются введением потенциала, который должен описывать экранирование заряда ядра внутренними электронными оболочками, а также псевдопотенциала, который моделирует ортогональность волновых функций валентного элек-

трона к волновым функциям внутренних оболочек. Одним из наиболее распространенных псевдопотенциалов, удовлетворяющим упомянутым требованиям, является псевдопотенциал Гельмана для щелочных атомов:

$$U(r) = -\frac{1}{r} + \frac{A e^{-2\mathcal{L}r}}{r}, \quad (I)$$

где A и \mathcal{L} - параметры, которые находят из требования минимума отклонения собственных значений уравнения Шредингера с потенциалом (I) от экспериментальных уровней энергии щелочных атомов.

Обычно (например, /2/) волновые функции имеют аналитический вид $C r^l e^{-\xi r}$ и их параметры находят из системы уравнений одновременно с параметрами A и \mathcal{L} псевдопотенциала. В настоящей работе уравнение Шредингера решалось численно в процессе минимизации суммы квадратов относительных отклонений собственных значений уравнения от экспериментальных энергий, заимствованных из /3/. Таким образом, волновая функция не была ограничена требованием соответствия слейтеровскому аналитическому выражению.

Строго говоря, правильный псевдопотенциал не является локальным и зависит от орбитального квантового числа валентного электрона. Однако выражение (I) дает неплохое согласие волновых функций и энергий для s - и p -электронов. Параметры A и \mathcal{L} , а также вычисленные и экспериментальные энергии для нижних трех уровней атома калия приведены в табл. I.

Т а б л и ц а I
Экспериментальные и расчетные уровни энергии атома калия

Параметры потенциала Гельмана	Вычисленные значения энергии	Экспериментальные значения энергии
$A=2.74433$	$E_{1s} = -0,156$	$E_{4s} = -0,159$
$\mathcal{L}=0.448702$	$E_{2p} = -0,099$	$E_{4p} = -0,100$
	$E_{2s} = 0,0667$	$E_{2s} = -0,0647$

Коэффициенты и показатели степени разложения волновой функции на ненормированные гауссовы составляющие приведены в табл.2.

Т а б л и ц а 2

Параметры разложения волновых функций калия на гауссовы составляющие (потенциал (I))

Состояние	Коэффициенты	Экспоненциальные параметры
4s (1s)	0,007167	0,02142
	0,04301	0,05326
	0,04572	0,6727
	0,1686	6,317
	0,05900	0,1445
5s (2s)	-0,07005	0,006392
	-0,2400	0,04095
	0,04041	0,04201
	-0,07904	0,45380
	0,3941	0,03955
4p (2p)	0,009367	0,01544
	0,1432	0,04511
	-0,01463	0,8872
5p (3p)	-0,0007406	0,303601
	-0,0042727	0,0063610
	-0,47428	0,034748
	0,11312	0,041828
	0,39230	0,0332462

Адиабатические электронные термы димера калия вычисляются методом Гайтлера-Донцона с учетом взаимодействия конфигураций, т.е. решением уравнения

$$\det | H_{ik} - E S_{ik} | = 0, \quad (2)$$

где H_{ik} - матричный элемент электростатического электрон-

ного гамильтониана молекулы

$$\hat{H} = \left[-\frac{1}{2}(\Delta_1 + \Delta_2) + U(r_{a1}) + U(r_{a2}) + U(r_{b1}) + U(r_{b2}) + \frac{1}{r_{12}} + \frac{1}{R} \right] (3)$$

с потенциалом (1), S_{ik} - матричные элементы перекрытия.

В качестве базисных функций используются антисимметризованные относительно перестановок между атомами произведения атомных волновых функций, которые содержат согласно выбранной модели атома лишь один электрон. Правильные волновые функции, кроме того, должны удовлетворять требованиям симметрии относительно отражения в вертикальной плоскости и инверсии по отношению к точке, лежащей на середине оси, соединяющей ядра атомов.

При расчете термов симметрии ${}^3\Sigma_g^+$ использовались четыре базисные функции:

$$\begin{aligned} u_1 &= g_1 (\psi_1 - \psi_2 + \psi_9 - \psi_{10}) \\ u_2 &= g_2 (\psi_3 - \psi_4 - \psi_{11} + \psi_{12}) \\ u_3 &= g_3 (\psi_5 - \psi_6 + \psi_{13} - \psi_{14}) \\ u_4 &= g_4 (\psi_7 - \psi_8 - \psi_{15} + \psi_{16}) \end{aligned} \quad (4)$$

$$\begin{array}{ll} \psi_1 = \psi_{1s}(\vec{r}_{1a}) \psi_{2s}(\vec{r}_{2b}) & \psi_9 = \psi_{1s}(\vec{r}_{1b}) \psi_{2s}(\vec{r}_{2a}) \\ \psi_2 = \psi_{1s}(\vec{r}_{2a}) \psi_{2s}(\vec{r}_{1b}) & \psi_{10} = \psi_{1s}(\vec{r}_{2b}) \psi_{2s}(\vec{r}_{1a}) \\ \psi_3 = \psi_{1s}(\vec{r}_{1a}) \psi_{2p_0}(\vec{r}_{2b}) & \psi_{11} = \psi_{1s}(\vec{r}_{1b}) \psi_{2p_0}(\vec{r}_{2b}) \\ \psi_4 = \psi_{1s}(\vec{r}_{2a}) \psi_{2p_0}(\vec{r}_{1b}) & \psi_{12} = \psi_{1s}(\vec{r}_{2b}) \psi_{2p_0}(\vec{r}_{1a}) \\ \psi_5 = \psi_{2s}(\vec{r}_{1a}) \psi_{2p_0}(\vec{r}_{2b}) & \psi_{13} = \psi_{2s}(\vec{r}_{2b}) \psi_{2p_0}(\vec{r}_{1b}) \\ \psi_6 = \psi_{2s}(\vec{r}_{2a}) \psi_{2p_0}(\vec{r}_{1b}) & \psi_{14} = \psi_{2s}(\vec{r}_{2b}) \psi_{2p_0}(\vec{r}_{1a}) \\ \psi_7 = \psi_{2p_0}(\vec{r}_{1a}) \psi_{3p_0}(\vec{r}_{2b}) & \psi_{15} = \psi_{2p_0}(\vec{r}_{1b}) \psi_{3p_0}(\vec{r}_{2a}) \\ \psi_8 = \psi_{2p_0}(\vec{r}_{2a}) \psi_{3p_0}(\vec{r}_{1b}) & \psi_{16} = \psi_{2p_0}(\vec{r}_{2b}) \psi_{3p_0}(\vec{r}_{1a}) \end{array}$$

Вообще говоря, в расчет методом Гайтлера-Лондона следует включать также базисные функции, соответствующие состояниям K^- и K^+ , но, по-видимому, для термов рассматриваемой симметрии, которые возникают при взаимодействии электро-

нов в разных состояниях, вклад ионных состояний не будет существенным.

Первым этапом расчетов является разложение используемых атомных волновых функций на гауссовы составляющие. Для нахождения разумного начального приближения коэффициентов и показателей гауссовых функций используется метод, изложенный в /4/. Его достоинство заключается в возможности непосредственно, без итераций вычислить коэффициенты и показатели гауссовых функций, соответствующих минимуму в методе наименьших квадратов. Затем проводится уточнение найденных значений методом Флетчера-Пауэлла. Следующая программа комплекса взводит параметры атомной модели (число электронов и оболочек, учитываемых в явном виде, заряд ядра). По имеющимся параметрам гельмановского псевдопотенциала находят параметры его разложения на гауссовы составляющие для последующего интегрирования одноэлектронных интегралов взаимодействия с остовом и ядром.

Третья программа комплекса строит матрицу молекулярных состояний по правилам Вигнера-Витнера, а четвертая часть формирует таблицы типов интегралов и коэффициенты при каждом отличающемся типе интегралов. Фактически эта часть комплекса дает формулы матричных элементов, выраженных через линейную комбинацию интегралов различных типов с заданными коэффициентами.

Следующий шаг вычислений связан с формированием шифров интегралов для всех заданных межъядерных расстояний. Затем осуществляется вычисление интегралов по методике /5, 6/ и диагонализация матрицы.

Предусмотрен режим работы программы для обнаружения конфигураций, наиболее сильно взаимодействующих с данной конфигурацией при заданном межъядерном расстоянии. После этого возможен автоматический переход на выполнение расчета в заданном базисе.

Следует отметить, что описанный комплекс программ предназначен для расчета взаимодействия не только одноэлектронных атомов, но и любых оболочек с s - или p -экви-

валентными электронами во внешних оболочках с точностью до членов, соответствующих однократным перестановкам электронов между атомами.

Вычисленные термы показаны на рис. I.

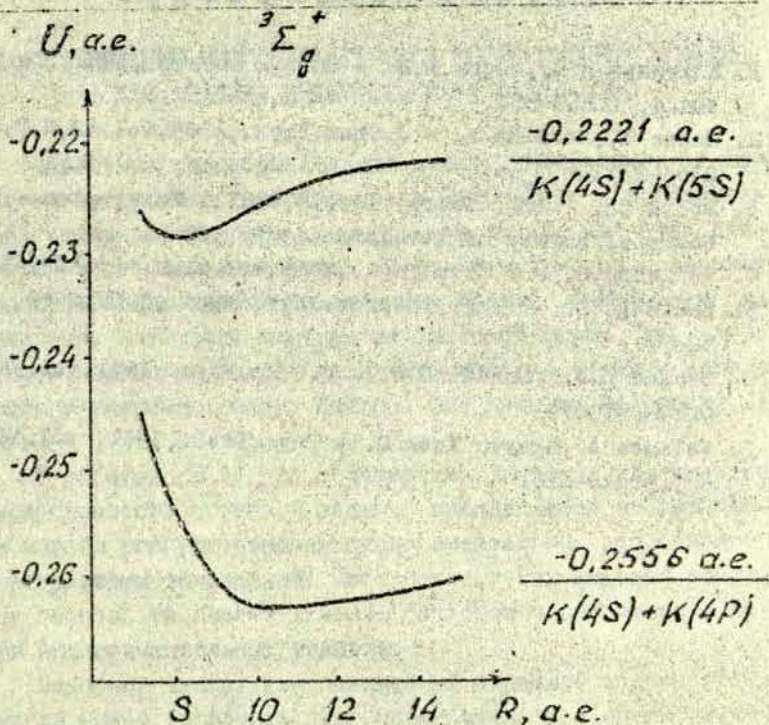


Рис. I Нижние ${}^3\Sigma_g^+$ термы димера калия. Справа указаны пределы диссоциации молекулярных состояний и их энергии.

При столь ограниченном базисе удовлетворительной точностью могут обладать только два нижних состояния. Положение минимума нижнего терма находится в хорошем согласии с рассчитанным в [7]; а энергии диссоциации, как и следовало ожидать, в настоящем расчете занижена.

Состояние ${}^3\Sigma_g^+$ (4S) + (5S) также является связанным с энергией диссоциации не менее 0,006 ат.ед. и равновесным междерным расстоянием около 8 ат.ед.

Расчеты выполнены в вычислительном центре Латвийского университета на ЭВМ GE-400.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

1. Клявиньш Я.П., Янсон М.Л. - Опт. и спектр., 1982, т.52, вып.4, с.630-634.
2. Szasz L., Mc.Ginn A. - J.Chem.Phys., 1965, vol.42, N 7, p. 2363-2372.
3. Moore Ch. Atomic Energy Levels, vol.1. Washington, US: National Bureau of Standards, 1949. 309 p.
4. Huzinaga S. - J.Chem.Phys., 1965, vol.42, N 4, p.1293-1302.
5. Huzinaga S. - Progr.Theoret.Phys.Suppl., 1967, N 40, p. 52-77.
6. Schaad L.J., Morrell G.O. - J.Chem.Phys., 1971, vol.54, N5 p.1965-1967.
7. Valance A., Nguyen Tuan Q. - Phys.Lett., 1981, vol. 82A, N 3, p.116-118.

ИССЛЕДОВАНИЕ МНОГОПАРАМЕТРОВОЙ РЕГРЕССИОННОЙ МОДЕЛИ
ДЛЯ АНАЛИЗА ИНТЕРФЕРОГРАММ ФАБРИ-ПЕРО

Известным способом анализа данных, полученных с помощью сканирующего интерферометра Фабри-Перо и восстановления истинного контура спектральной линии, является дискретное преобразование Фурье /1-3/. Данный метод позволяет либо произвести обращение интерферограммы Фабри-Перо для нахождения истинного контура неизвестной формы /3/, либо оценить параметры модели истинного контура (контур доплеровского уширения, контур Фойгта) по данным измерений /1, 2, 4/.

В работах /3, 4/ для определения факторов, влияющих на обусловленность обратной задачи, предлагаются теоретические модели распространения экспериментальных погрешностей на результаты вычислений. Построение таких моделей позволяет произвести анализ влияния факторов и оптимизацию выбора экспериментальных условий.

Подобный анализ для нелинейной обратной задачи практически можно выполнить лишь применительно к асимптотическому распределению, когда объем выборки экспериментальных данных неограниченно растет /5/. Дополнительные осложнения возникают при рассмотрении многопараметровых задач (из одного набора данных определяется несколько параметров), когда плохая обусловленность задачи выражается как корреляция между определяемыми величинами. Теоретическое построение полной многомерной функции распределения параметров для нелинейных обратных задач при этом можно считать нереальным, а анализ только выражений для расчета дис-

персий или коэффициентов вариаций недостаточен.

Для преодоления указанных трудностей можно пользоваться численными методами анализа /5/. Они включают статистическое моделирование (метод Монте-Карло) для исследования влияния экспериментальных погрешностей при решении обратной задачи и численный анализ ковариационных матриц результатов. При этом используется в основном тот же математический аппарат, что и для решения самой обратной задачи, что определяет доступность данного метода анализа.

Целью данной работы является численное исследование задачи определения фойгтовских параметров контура спектральной линии с использованием дискретного преобразования Фурье. Подобные теоретические исследования для задачи обращения интерферограммы Фабри-Перо и задачи определения доплеровских уширений и смещений спектральной линии проведены в /4/. Наши исследования проводились на ЕС ЭВМ по комплексу программ нелинейной регрессии REGEST /6/.

Регрессионная модель для определения дисперсионной $\Delta \nu_L$ и гауссовской $\Delta \nu_D$, составляющих уширения спектральной линии представляется системой уравнений /2/

$$c_i = A [R \exp(-L)]^i [\exp(-D^2/4)]^{i^2}, \quad i = 1, 2, \dots, k, \quad (1)$$

где c_i - коэффициент i -той гармоники фурье-разложения интерферограммы; A - постоянная нормирования; R - коэффициент отражения зеркал; L, D - параметры: $L = \pi \Delta \nu_L / \Delta \sigma$; $D = \pi \Delta \nu_D / \Delta \sigma (\ln 2)^{1/2}$; $\Delta \sigma$ - константа эталона; k - число используемых гармоник.

Коэффициенты фурье-разложения объединяются в k -мерный вектор \vec{c} . Тогда вектор \vec{c} получается из дискретного представления измерений одного интерференционного порядка в N равноотстоящих точках вектором \vec{y} с помощью линейного преобразования

$$\vec{c} = T \vec{y}; \quad (2)$$

где T - матрица преобразования размером $k \times N$ с элементами

$$T_{ij} = \begin{cases} 1/2, & j=1, j=N; \\ \cos [2\pi i (j-1) / (N-1)], & j \neq 1, j \neq N. \end{cases}$$

Экспериментальные погрешности определения вектора \vec{y} задаются ковариационной матрицей измерений V_y и распространяются на фурье-разложение \vec{c} по закону

$$V_c = T V_y T^T, \quad (3)$$

где V_c - ковариационная матрица фурье-разложения; T^T - транспозиция матрицы T .

Для определения интересующих нас параметров контура Фойгта используем следующую методику: вычисляем фурье-разложение \vec{c} и ковариационную матрицу V_c по выражениям (2) и (3) при $k \geq 3$ и далее решаем систему уравнений (1) относительно неизвестных параметров A , L и D по методу нелинейной регрессии Деминга [5], исходя из предположения о нормальности распределения погрешностей данных. Приведенный метод позволяет одновременно обрабатывать несколько интерференционных порядков в числе n , что уменьшает влияние погрешностей измерений посредством неявного усреднения.

Результаты вычислений представляются в виде оценок максимального правдоподобия параметров A , L и D и их совместной ковариационной матрицы V_p , рассчитанной по линейному приближению закона распространения ошибок. Оценка ковариационной матрицы параметров является источником информации о статистическом характере полученных оценок; по ней можно построить доверительную область параметров.

Влияние экспериментальных погрешностей на результаты определения параметров спектральной линии исследовалось методом статистического моделирования. Моделировались численные данные "эксперимента" для параметров $L = 0,75$, $D = 0,233$, искаженные нормально распределенными случайными погрешностями с заданными стандартными отклонениями, решалась задача определения параметров и накапливались откло-

нения полученных оценок от "истинных" значений. После проведения 100 циклов моделирования вычислялась выборочная ковариационная матрица параметров, которая проверялась на согласие с V_p по критерию Корина [7]. Нормальность выборочного распределения параметров проверялась по критерию χ^2 .

Установлено, что значительное отклонение от линейности и нормальности наблюдается при погрешностях порядка 0,5% максимальной интенсивности для данной области параметров. На рис. 1 представлены проекции 95% — х доверитель-

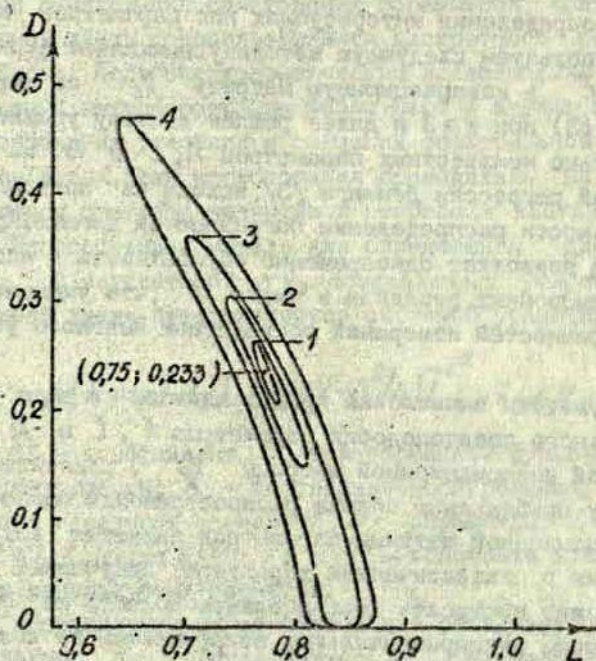


Рис. 1 Доверительные области параметров, построенные по результатам статистического моделирования, для разных значений относительных погрешностей: 1 - 0,1%, 2-0,25%, 3-0,5%, 4-1,0%. $R = 0,95$, $N = 65$; $n = 1$, $k = 10$.

ных областей параметров на плоскость L, D , которые построены по результатам моделирования при разных погрешностях. Для относительных погрешностей порядка 0,1 и 0,25% наблюдается хорошее согласие с эллипсом нормального распределения, а для более высоких погрешностей появляется заметное отклонение, как нарушение симметричности распределения параметров.

Далее численно исследовалось влияние факторов N, n, K, R и $\Delta \sigma$, входящих в формулировку задачи, на точность определения параметров L и D . Моделировались данные "эксперимента" с исходными значениями $L = 0,75$ и $D = 0,233$ для разных наборов факторов, решалась задача оценивания параметров и проводился анализ полученных оценок ковариационных матриц параметров. В табл. I приведены результаты численных исследований: стандартные отклонения оценок параметров $\sigma(L)$ и $\sigma(D)$, коэффициенты вариации параметров $\sigma(L)/L$ и $\sigma(D)/D$, коэффициент линейной корреляции $\rho(L, D)$ и объем 95%-й доверительной области $\Omega_{0,95}$. Проекция доверительной области на плоскость L, D в координатах вариации параметров δL и δD представлены на рис. 2, а-г.

Численный анализ ковариационной матрицы оценок параметров показал сильную отрицательную корреляцию между параметрами L и D - порядка 0,97, которая весьма слабо зависит от исследуемых факторов. Наблюдаемая корреляция выражает плохую обусловленность задачи и является препятствием для независимого определения одного из параметров, например, для оценки температуры разряда по D при неизвестном L . К тому же D определяется значительно хуже, чем L , т.е. доверительная область более вытянута вдоль оси D .

Увеличение числа измеренных точек в одном порядке интерференции N и числа обрабатываемых порядков n повышает точность определения параметров прямо пропорционально квадратному корню от общего числа точек nN (рис. 2, а). Если условие Найквиста для дискретного преобразования

Таблица I

Стандартные отклонения, коэффициенты вариации и корреляции, объемы доверительных областей оценок параметров при разных наборах факторов $R, \Delta \sigma, N, n, k$

R	$\frac{\Delta \sigma}{\text{отн. ед.}}$	N	n	k	$\sigma(L)$	$\sigma(D)$	$\frac{\sigma(L)}{L}$	$\frac{\sigma(D)}{D}$	$\rho(L, D)$	$Q_{0,95} \cdot 10^5$
0,85	1,0	33	5	10	0,0292	0,0662	0,0389	0,2840	-0,9754	7,648
0,85	1,0	65	5	10	0,0209	0,0477	0,0278	0,2047	-0,9748	2,899
0,85	1,0	129	5	10	0,0148	0,0340	0,0197	0,1459	-0,9745	1,055
0,85	1,0	65	1	10	0,0466	0,1066	0,0622	0,4576	-0,9748	32,41
0,85	1,0	65	2	10	0,0330	0,0754	0,0440	0,3236	-0,9748	11,46
0,85	1,0	65	10	10	0,0147	0,0337	0,0197	0,1447	-0,9748	1,025
0,85	1,0	65	5	3	0,0338	0,0848	0,0451	0,3638	-0,9888	5,598
0,85	1,0	65	5	5	0,0219	0,0507	0,0293	0,2178	-0,9770	3,110
0,85	1,0	65	5	15	0,0208	0,0476	0,0278	0,2043	-0,9748	2,883
0,75	1,0	65	5	10	0,0281	0,0675	0,0375	0,2897	-0,9794	5,216
0,95	1,0	65	5	10	0,0161	0,0349	0,0215	0,1496	-0,9701	1,730
0,85	0,75	65	5	10	0,0424	0,0805	0,0424	0,2589	-0,9852	11,20
0,85	2,0	65	5	10	0,0077	0,0254	0,0205	0,2179	-0,9515	0,382

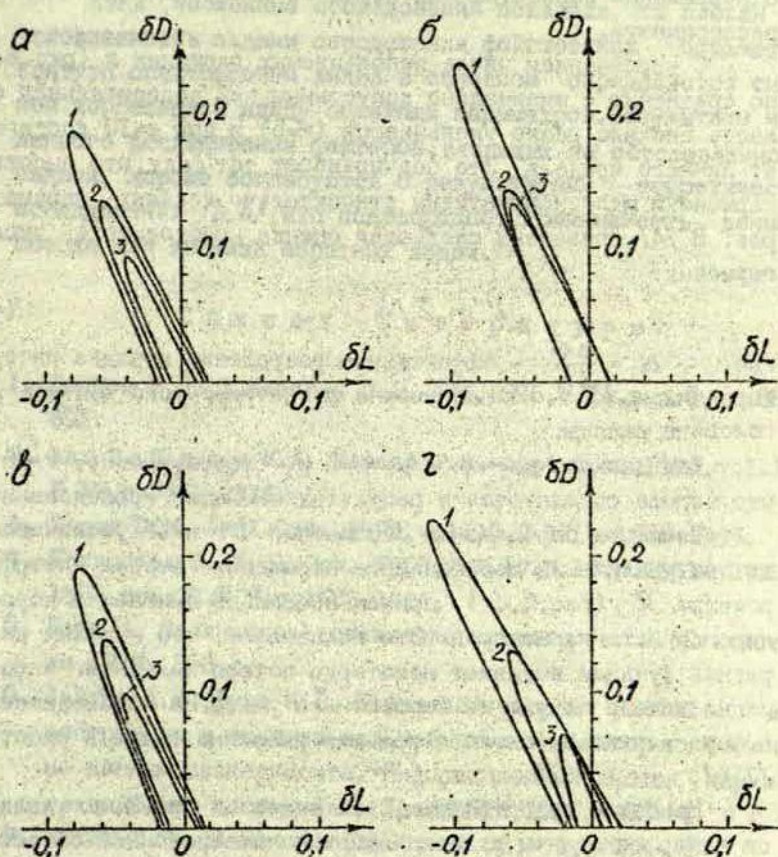


Рис.2 Изменения доверительных областей параметров при варьировании факторов

nN (а), k (б), R (в) и $\Delta\sigma$ (г).

а: 1- $nN=165$; 2- $nN=325$; 3- $nN=645$; $R=0,85$; $\Delta\sigma=1$; $k=10$;

б: 1- $k=3$; 2- $k=5$; 3- $k=10$; $R=0,85$; $\Delta\sigma=1$; $N=65$; $n=5$;

в: 1- $R=0,75$; 2- $R=0,85$; 3- $R=0,95$; $\Delta\sigma=1$; $N=65$; $n=5$; $k=10$;

г: 1- $\Delta\sigma=0,75$; 2- $\Delta\sigma=1$; 3- $\Delta\sigma=2$; $R=0,85$; $N=65$; $n=5$; $k=10$.

Фурье $N \geq 2k$ соблюдено, то целесообразно увеличить число

одновременно обрабатываемых порядков для усреднения данных эксперимента.

С увеличением числа используемых гармоник k (рис.2*б*) по сравнению с минимально допустимым $k=3$ доверительная область сначала резко уменьшается ($k=5$) и при $k=10$ достигает нижнего предела. Это подчеркивает тот факт, что высокие гармоники малоинформативны относительно искомых параметров. В /4/ приведена следующая оценка необходимого числа гармоник:

$$k \approx 2 N_e, \quad (4)$$

где $N = \frac{\Delta \delta}{\Delta \nu_F}$ - эффективное разрешение порядка интерференции; $\Delta \nu_F$ - полная ширина регистрируемого контура на половине высоты.

Для данного случая $N_e \approx 3$ и, следовательно, $k \approx 6$, что хорошо согласуется с результатами наших исследований.

Точность определения параметров L и D увеличивается при увеличении коэффициента отражения зеркал интерферометра R (рис.2,*б*), причем несколько снижается коррелированность параметров. Это показывает, что широкая аппаратная функция вызывает некоторую потерю полезной информации даже в случае ее корректного учета. На необходимость выбора зеркал высокого отражения указано также в работах /3,4/.

Наиболее существенным, как видно из рис.2,*г*, является выбор константы эталона (ширины дисперсионной области) $\Delta \delta$. Увеличение $\Delta \delta$ вызывает уменьшение и поворот доверительной области, при этом значительно уменьшается и степень коррелированности параметров. Можно предположить, что плохая обусловленность данной задачи в основном определяется перекрытием соседних порядков интерференции. Уменьшение степени перекрытия путем увеличения $\Delta \delta$, однако, приводит к требованию увеличить k и N (большое N_e), что значительно увеличивает размерность задачи и время счета. Разумным компромиссом является выбор такого $\Delta \delta$, чтобы $N_e = 8$ ($k=16, N > 32$) /3/.

Итак, численные исследования показали, что плохая обусловленность задачи определения фойгтовских параметров контура спектральной линии в основном определяется сильной корреляцией между оценками параметров. Результаты численного исследования факторов, влияющих на обусловленность задачи, хорошо согласуются с результатами теоретических исследований /3,4/, что подтверждает применимость данного метода для анализа обратных задач.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

1. Донцов Д.П., Завенягин Э.А. - ЖПС, 1976, т.24, вып.5, с.886-892.
2. Mar S., Gigoso M.A., Moreno J.M. - Appl. Opt., 1979, vol.18, N 17, p.2914-2916.
3. Zipoy D.M. - Appl. Opt., 1979, vol.18, N 12, p.1988-1995.
4. Hernandez G. - Appl. Opt., 1978, vol.17, N 18, p.2961-2972 ; 1982, vol.21, N 9, p.1685-1698.
5. Бард И. Нелинейное оценивание параметров. М.: Статистика, 1979. 350 с.
6. Лейтас А.М., Лукс И.Ю. Комплекс программ REGEST для построения и анализа нелинейных многофакторных моделей по данным эксперимента. - Информационный листок научно-технических достижений, ЛатНИИТИ, 1982, № 62-14. 4 с.
7. Korin V.P. - Biometrika, 1968, vol.55, N 1, p.171-178.

ОБРАБОТКА ИНТЕРФЕРОГРАММ ПРИ ИССЛЕДОВАНИИ КОНТУРОВ СПЕКТРАЛЬНЫХ ЛИНИЙ

В общем случае экспериментально полученная интерферограмма описывается интегралом свертки:

$$\psi(x) = \int_{-\infty}^{\infty} \varphi(x') A(x-x') dx', \quad (1)$$

где $\psi(x)$ — экспериментально зарегистрированный контур, $\varphi(x')$ — истинный контур спектральной линии и $A(x-x')$ — обозначает аппаратную функцию. Определение истинного контура спектральной линии — функции $\varphi(x')$ известно под названием решения обратной задачи. Из-за неминуемых случайных ошибок в экспериментальных данных решение уравнения нестабильно: ошибки в данных могут создать произвольно большую неопределенность в решении. Другими словами, эти задачи являются плохо обусловленными. Как указано в работе [1], стабилизация решения интегрального уравнения требует априорных знаний об искомом распределении $\varphi(x')$. При математической обработке результатов экспериментальных измерений возникают два задания: во-первых, ввести априорные данные о решении в вычислительный алгоритм и, во-вторых, оценить точность решения при заданной точности эксперимента. Авторы обзорной работы [2] выделяют два подхода к решению проблемы по стабильности обратных задач: методы регуляризации и подгонку экспериментальных результатов к модели с использованием метода наименьших квадратов. В последнем методе чаще всего применяется параметризация задачи, то есть входящие в уравнение (1) функции выражаются через аналитически заданные функции типа гауссовой, дисперсионной и фойгтовской формы. Тогда для решения

обратной задачи ищут параметры, характеризующие выбранную аппроксимированную форму. Таким образом, априорной информацией служит аппроксимация всех входящих в (I) функций аналитическими функциями. Первоначально математическое описание интерференционной картины в виде свертки отдельных аналитических функций было предусмотрено для графической редукции истинного профиля спектральной линии. Свертка рассчитывалась в отдельных точках контура, и строились таблицы и номограммы. Экспериментальные результаты сопоставляли с предполагаемой моделью по таблицам и графикам, приведенным в работах разных авторов /3-5/ и подробно рассмотренным в статье /6/. Киелкопф в работе /7/ предлагал вариант приближения функции Фойгта, позволяющий в аналитическом виде выразить связь между экспериментально определяемыми величинами и параметрами фойгтовского профиля. Влияние шума на экспериментальные данные учитывается расчетом параметров фойгтовской функции в пределах стандартного отклонения измерений.

Функция Фойгта является реальной аппроксимирующей распределения интенсивности по контуру спектральной линии потому, что в нее входит как гауссово распределение, (доплеровское уширение из-за термического движения атомов), так и дисперсионное распределение (уширения из-за соударения высвечивающих атомов с окружающими частицами), которые являются определяющими эффектами уширения спектральных линий в низкотемпературной плазме. Нами показано /8/, что аппаратный контур также хорошо аппроксимируется функцией Фойгта.

Методы аппроксимации выходных данных стали широко применять со времени появления автоматизированных установок для получения интерферометрических данных /9-11/. Предложенный в работе /7/ расчетный метод анализа интерферограмм применен нами для исследования контуров спектральных линий свинца в высокочастотной безэлектродной лампе (ВЕЛ).

Лампа помещалась в катушку высокочастотного генера-

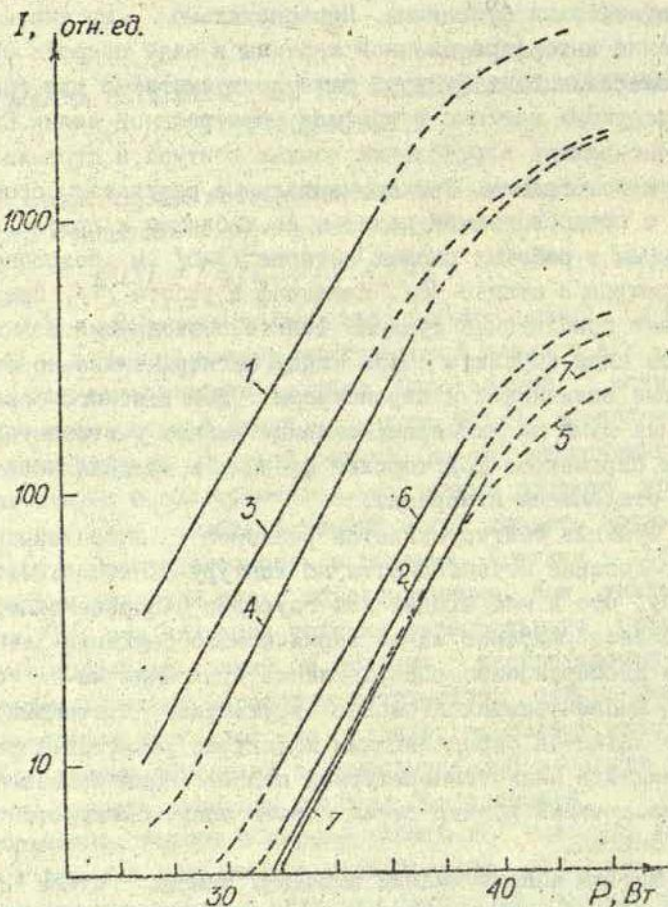


Рис. 1 Относительная интенсивность спектральных линий свинца в зависимости от подводимой к высокочастотному генератору мощности: 1-405,8 нм; 2-374,0 нм; 3-368,3 нм; 4-363,9 нм; 5-357,2 нм; 6-287,3 нм; 7-282,7 нм.

тора с термостабилизацией /12/. Сначала зарегистрированы интегральные интенсивности спектральных линий в зависимости от мощности высокочастотного генератора (рис.1). В интервале экспоненциальной зависимости относительной интенсивности от мощности высокочастотного генератора спектральные линии не испытывают самопоглощения. Из рисунка видно, что для разных линий эта область различна. Например, интенсивность линии 405,8 нм прямолинейна в области до 35 Вт, а линии 287,3 нм - до 39 Вт.

Экспериментальная установка для регистрации контуров спектральных линий содержала сканируемый давлением интерферометр Фабри-Перо. Программа обработки данных составлена на мини-ЭВМ ДЗ-28 при использовании аналитического приближения функции Фойгта. Рассчитанные значения дисперсионных составляющих разных спектральных линий в зависимости от константы интерферометра показаны на рис.2. Дисперсионная

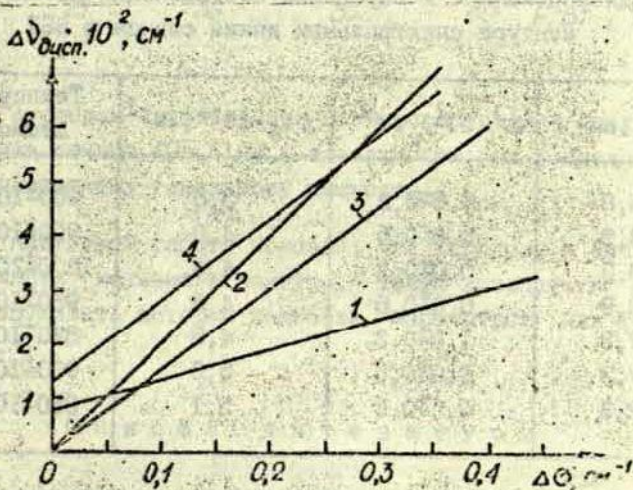


Рис.2 Дисперсионная составляющая экспериментального контура спектральных линий свинца при изменении константы интерферометра: 1-405,8 нм; 2-368,3 нм; 3-363,9 нм; 4-357,3 нм.

составляющая экспериментального профиля состоит из аппаратной части $\Delta\nu_{ап}$ и части истинного контура $\Delta\nu_L$:

$$\Delta\nu_{гусл} = \Delta\nu_L + \Delta\nu_{ап} = \Delta\nu_L + \Delta\mathcal{C}/N_R, \quad (2)$$

где $\Delta\mathcal{C}$ - константа интерферометра, N_R - эффективное число интерферирующих пучков - константа для данного коэффициента отражения зеркала и длины волны. Дисперсионная составляющая истинного контура определялась линейной экстраполяцией. Параметры прямой определялись методом наименьших квадратов. Ошибки оценивались по статистическому разбросу результатов измерений. Полученные значения дисперсионной и гауссовой составляющих истинного контура с ошибками для разных спектральных линий свинца представлены в табл. I.

Т а б л и ц а I

Дисперсионные и гауссовые составляющие истинного контура спектральных линий свинца в БЕЛ

λ , нм	$\Delta\nu_L \cdot 10^2$, см ⁻¹	$\Delta\nu_G \cdot 10^{-2}$, см ⁻¹	Температура атомов, К
405,8	0,8±0,2	3,6	900±100
373,9	0,8±0,5	4,0	900±100
368,3	0,0±0,5	4,4	1000±200
363,9	0,0±0,6	4,3	980±100
357,3	1,3±0,3	4,0	820±100
287,3	1,0±0,5	5,2	900±100
282,3	0,6±0,3	5,1	880±100

По нашим измерениям, средняя температура излучающих атомов свинца равна 910 ± 80 К. Но, как указано в работе [13], на ширину линии может влиять неоднородность распределения атомов в разряде. На рис.3 показано полученное доплеровское уширение спектральной линии 405,8 нм в зависимости от мощ-

ности высокочастотного генератора. Увеличение ширины линии связано с реабсорбцией излучения в лампе, обусловленной процессом перераспределения атомов по объему лампы.

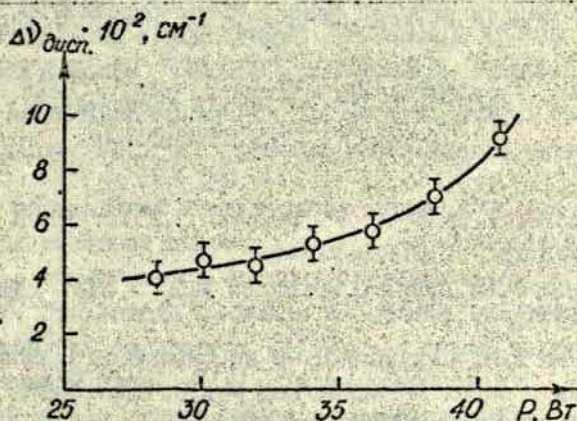


Рис. 3. Гауссова составляющая истинного профиля спектральной линии свинца 405,8 нм в зависимости от подводимой к высокочастотному генератору мощности.

В настоящей работе показано, что гауссову и дисперсионную части истинного контура, а также аппаратный контур можно оценивать методом подгонки параметров для функции Фойгта.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

1. Раутиан С.Г. - УФН, 1958, т. 66, вып. 3, с. 450-517.
2. Bertero M., De Mol C., Viano G.A. - In: Inverse Scattering Problems in Optics. Berlin, Springer-Verlag, 1980, p. 161-214.
3. Van der Hulst H.C., Reesinck J.J.M. - Astrophys. Journ.,

- 1947, vol. 106A, N 1, p. 121-127.
4. Ballik E.A. - Applied Optics, 1966, vol. 5, N 1, p. 170-172.
 5. Донцов Ю.П., Завенягин Ю.А. - ЖПС, 1976, т. 24, вып. 5, с. 886-892.
 6. Величко А.Г., Цой В.И., Кац М.Л. - В кн.: Некорректные обратные задачи атомной физики. Новосибирск: ИТГМ, 1976, с. 34-44.
 7. Kielkopf J.F. - JOSA, 1973, vol. 63, N 8, p. 987-995.
 8. Лиела С.Я., Лукс И.Ю. - В кн.: Сенсibilизированная флуоресценция смесей паров металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1979, с. 115-121.
 9. Knutson J.W., Bennett Jr., Bennett W.R. Jr. - Phys. Rev. A, 1976, vol. 13, N 1, p. 318-325.
 10. Круминьш А.П., Лиела С.Я., Янсон У.В. - ПТЭ, 1980, № 5, с. 190-191.
 11. Круминьш А.П., Скудра А.Я. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов / Под ред. Э.К. Краулинь. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1981, с. 174-177.
 12. Силиньш Ю.А., Убелис А.П. - В кн.: Сенсibilизированная флуоресценция смесей паров металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1979, с. 122-125.
 13. Агапов А.С., Смирнова Г.М., Хуторщиков В.И. - Настоящий сборник, с. 152-161.

ОПРЕДЕЛЕНИЕ КОНЦЕНТРАЦИИ НОРМАЛЬНЫХ АТОМОВ ПО
ПОГЛОЩЕНИЮ "ЧЕРНОГО" ИЗЛУЧЕНИЯ В ПРЕДЕЛАХ
РЕЗОНАНСНЫХ ЛИНИЙ ОПТИЧЕСКИ ПЛОТНОГО
НЕОДНОРОДНОГО РАЗРЯДА

Для определения концентрации атомов N_0 при больших оптических толщинах плазмы $\tilde{\tau}_0 \gg 1$ предложено несколько методов, в том числе по полному поглощению A_G в пределах линии $I/$. Эти методы основаны на знании частотной зависимости сечения поглощения $\mathcal{G}(\nu)$ или формы контура в оптически тонком слое $\rho(\nu)$, нормированной к 1, и достаточно просты для гауссовского и дисперсионного вида $\rho(\nu)$ и однородной плазмы.

Как правило, в конкретных условиях приходится иметь дело с более сложным видом контура, неоднородностью распределений атомов, что значительно осложняет задачу нахождения N_0 . В большинстве случаев определить экспериментально параметры $\rho(\nu)$ весьма затруднительно, поэтому $\rho(\nu)$ рассчитывают, исходя из оценок основного уширяющего взаимодействия. Соответствие расчетного контура $\rho(\nu)$ реальному контуру оценивается опосредованно по тому, насколько точно вычисленное распределение интенсивности линии в излучении $I(\nu, x) = f(\rho, N_0)$ или в поглощении $\Phi(\nu, x)$ совпадает с наблюдаемым в источнике. Очевидно, такой подход может привести к существенным ошибкам, так как совпадение является, вообще говоря, лишь необходимым, но не достаточным условием для правильности найденных значений N_0 . Поэтому работоспособность метода, включая и точность оценки парамет-

ров $\rho(\nu)$, должна быть подтверждена путем определения N_0 каким-либо независимым методом, что и проделано в данной работе.

В изучаемом осесимметричном ртутном разряде высокого давления с добавками иодидов TlI , InI и NaI , как следует из наблюдений контуров линий, распределение $N_0(r)$ таллия, индия и натрия неоднородно ввиду перераспределения атомов на расщепленном основном уровне $Tl 6^2P_{1/2,3/2}$, $In 5^2P_{1/2,3/2}$. диссоциации молекул TlI , InI , NaI и неоднородного их поступления в разряд. Анализ крыльев резонансных линий $Tl 377, 535$, $In 410, 451$ и $Na 589/590$ нм и оценки параметров контуров показали также, что $\rho(\nu, r)$ имеет асимметрический вид с сателлитными горбами, обусловленный преимущественно уширением давлением ртути [2]. При этом распределение атомов Hg по сечению трубки в первом приближении можно считать равномерным, за исключением узкого пристеночного слоя, в котором добавки существуют в форме иодидов, т.е. зависимость ρ от r можно пренебречь.

Зависимость $\rho(\nu)$ рассчитывалась нами для двух видов потенциала взаимодействия между парами атомов добавок (Tl , In , Na) и Hg : потенциала Ван-дер-Ваальса $\Delta V(\rho) = -\Delta C_6 \rho^{-6}$ и потенциала Ленарда-Джонса $\Delta V(\rho) = \Delta C_{12} \rho^{-12} - \Delta C_6 \rho^{-6}$, где ΔC_6 , ΔC_{12} - разность силовых констант верхнего и нижнего состояний излучательного перехода соответственно притяжения и отталкивания.

В предположении потенциала Ван-дер-Ваальса [3]

$$P_{VV}(z) = \begin{cases} P^{(+)} = \frac{T^{-1} a}{a^2 + (z - \beta)^2} & z > 0 \\ P^{(-)} = D \int_{-\infty}^0 \frac{t^{3/2} e^{-t}}{[c - t(z - \beta)]^2 + (at)^2} dt & z < 0, \end{cases} \quad (1)$$

где $z = \nu - \nu_0$ - частота, отсчитанная от центра линии ν_0 , D - нормировочный множитель, определяемый из условия сшивания ρ в точке $z = 0$, $t :: z$, N - концентрация

атомов ртути, a - дисперсионная полуширина линии, β - сдвиг линии $\sim (-0,71a)$,

$$a = 4,08 \left(\frac{\Delta C_6}{h} \right)^{2/5} v^{3/5} N, \quad c = \frac{4\sqrt{3} \Delta C_6 N^2}{9h}, \quad (2)$$

v - относительная скорость сталкивающихся частиц.

В предположении потенциала Ленарда-Джонса предложено [4]:

$$P_{HD}(z) = e^{-H} \left[P_0(z) + H P_1(z) + \frac{H^2}{2} P_2(z) + \dots \right], \quad H = \frac{4}{3} \sqrt{3} \rho_0^3, \quad (3)$$

где H - число возмущающих частиц в сфере взаимодействия радиуса ρ_0 ; P_0, P_1, P_2, \dots - контур линии соответственно по числу частиц в сфере с радиусом ρ_0 ,

$$P_0(z) = a_0 T^{-1} [(z - \beta_0)^2 + a_0^2]^{-1}, \quad a_0 = 2\sqrt{3} \rho_0^2 v N; \quad (4)$$

$$P_1(z) = a_1 T^{-1} \int_d^b \frac{P_1^{(*)}(z') dz'}{(z - \beta_0 - |z'|)^2 + a_1^2} + a_1 T^{-1} \int_d^\infty \frac{P_1^{(*)}(z') dz'}{(z - \beta_0 - |z'|)^2 + a_1^2}, \quad (5)$$

где

$$a_1 = \frac{3}{2} v \rho_0^{-1}, \quad b = \frac{(\Delta C_3)^2}{4h \Delta C_{12}}, \quad d = \left| \frac{\Delta C_{12}}{h \rho_0^{12}} - \frac{\Delta C_6}{h \rho_0^3} \right|, \quad \beta_0 = \frac{4\sqrt{3}}{3h} \left[\frac{\Delta C_{12}}{3\rho_0^9} - \frac{\Delta C_6}{\rho_0^3} \right],$$

$$P_1^{(*)}(z) = \left(\frac{\sqrt{b}}{4} \sqrt{1 + \sqrt{1 + d/b}} \right)^{1/2} z^{-3/2} \frac{[-1 + \sqrt{1 + z/b}]^{3/2}}{\sqrt{1 + z/b}}, \quad z > 0 \quad (6)$$

$$P_1^{(*)}(z) = \frac{\sqrt{d}}{4} \left[(1 + \sqrt{1 - d/b})^{1/2} - (1 - \sqrt{1 - d/b})^{1/2} \right]^{-1} z^{-3/2} \cdot \frac{(1 + \sqrt{1 - z/b})^{3/2} + (1 - \sqrt{1 - z/b})^{3/2}}{\sqrt{1 - z/b}}, \quad z < 0. \quad (7)$$

Величина ρ_0 определялась нами из уравнения /5/:

$$h \nu \rho'' = \left| \pi^{1/2} \frac{\Gamma(11/2)}{\Gamma(6)} \Delta C_{12} - \pi^{1/2} \frac{\Gamma(5/2)}{\Gamma(3)} C_6 \rho^6 \right|. \quad (8)$$

Из трех действительных корней по физическим соображениям выбиралось максимальное значение ρ_0 .

Значения ΔC_6 вычислялись по формуле Лондона, ΔC_{12} - по экспериментально измеренному положению первых спутников линий согласно методу Хиндмарша-Фарра /6/.

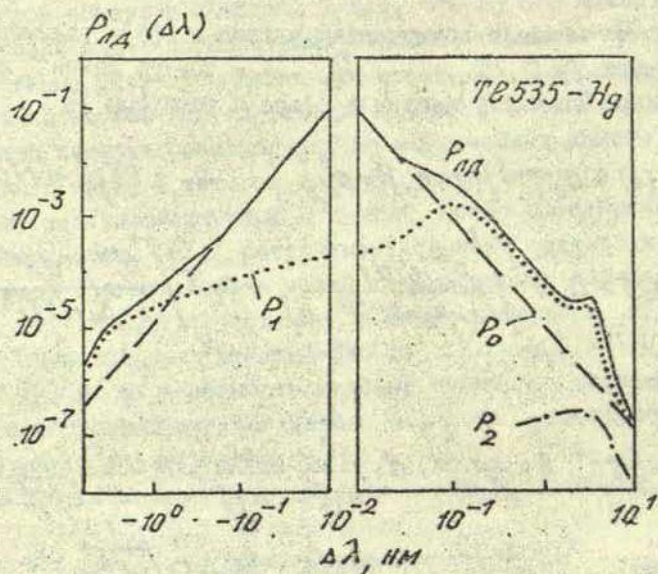


Рис. I. Нормированная форма контура $P_{LD}(\Delta\lambda)$ и ее составляющие P_0 , P_1 , P_2 , рассчитанные для линии Tl 535 нм, уширенной ртутью, при аппроксимации межатомного взаимодействия Tl-Hg потенциалом Ленарда-Джонса и учете спутниковой структуры крыльев.

Появление спутников накрывающих линии обязано существованию экстремумов на кривой $\Delta V(\rho)$ эксимеров $TlHg, InHg$ /7/. Расчеты $P_{HD}(z)$ с учетом $P_2(z)$, ответственного за появление второго спутника на контуре на расстоянии $2d'$ от y_0 , показали, что при концентрациях ртути $N \leq 10^{19} \text{ см}^{-3}$ в формуле (3) третьим и последующими членами можно пренебречь (рис.1).

Концентрация нормальных атомов может быть определена, если известен интегральный коэффициент поглощения в резонансной линии

$$K = \int_{-\infty}^{\infty} \phi(z) N_0 dz = \frac{f e^2 f}{m_e c_0} N_0 = \chi_0 a F(c), \quad (9)$$

где f - сила осциллятора перехода, c_0 - скорость света, χ_0 - коэффициент поглощения в центре линии. Функция $F(c)$ была рассчитана численно и является универсальной для всех линий, уширенных ртутью.

При просвечивании исследуемого разряда "черным" излучением, намного превосходящим свечение разряда, например, от эталона ЭВ-45, легко получить контур полного поглощения в линии:

$$\Phi(z) = 1 - \exp[-\chi_0 l P(z)], \quad (10)$$

где l - геометрическая длина пути в плазме.

Эквивалентная его ширина согласно [1]

$$A_G = a \int_{-\infty}^0 [1 - e^{-\chi_0 l P^{(1)}}] dz + a \int_0^{\infty} [1 - e^{-\chi_0 l P^{(2)}}] dz \quad (11)$$

была нами рассчитана для ряда τ_0 и c . Зависимость $A_G(\tau_0, c)$ аппроксимировали полиномом

$$A_G' = \sum_{i=0}^{m_i} \sum_{k=0}^i \alpha_{ki}(c) (\tau_0')^k, \quad (12)$$

где $m = 9$, \mathcal{K}_{ki} - матрица коэффициентов, $A'_G = \lg A_G$, $c' = \lg c$, $\tau'_0 = \lg \tau_0$.

Таким образом, процедура использования метода сводится к следующей программе действий: просвечиванию п-азмы по каждому лучу наблюдения \mathcal{K} , определению $A_G(\mathcal{K})$ и по (12) распределения $\tau_0(\mathcal{K})$; затем, проделав с $\tau_0(\mathcal{K})$ инверсию Абеля, получим $\mathcal{K}_0(r)$ и по (9) искомого распределение $N_0(r)$.

Достоинством метода является применимость при больших оптических толщинах ($\tau_0 > 10^2$) ввиду малой ошибки в определении A_G (2-3%) и слабой ее зависимости с ростом τ_0 .

На установке, описанной в /8/, были определены распределения $N_0(r)$ на основных уровнях Tl , In , Na в разрядных трубках с исходной дозировкой TlF - 2,4,6,7,9 мг ($\pm 15\%$), InF - 1,22 мг ($\pm 15\%$), NaF - 20 мг ($\pm 20\%$). Для иллюстрации в табл. I приведены $N_0(r)$, найденные в центральном сечении трубки.

Т а б л и ц а I

Концентрация атомов добавок $N_0(r)$ в трубке с дозировкой TlF 7 мг, InF 1,2 мг, NaF 20 мг.

Ошибка: $\delta N_0 \sim 10\%$

Уровень r , см	$Tl\ 6^2P_{1/2}$	$Tl\ 6^2P_{3/2}$	$In\ 5^2P_{1/2}$	$In\ 5^2P_{3/2}$	$Na\ 3^2S_{1/2}$
	$N_0(r)$, $10^{17}\ \text{см}^{-3}$	$N_0(r)$, $10^{17}\ \text{см}^{-3}$	$N_0(r)$, $10^{17}\ \text{см}^{-3}$	$N_0(r)$, $10^{16}\ \text{см}^{-3}$	$N_0(r)$, $10^{14}\ \text{см}^{-3}$
0,0	1,9	1,0	1,0	5,0	4,1
0,1	1,9	1,0	1,0	5,0	4,3
0,2	2,0	1,0	1,0	4,6	4,5
0,3	2,2	1,0	1,1	4,1	5,1
0,4	2,3	0,9	1,0	3,8	6,0
0,5	2,2	0,6	1,0	3,5	7,3
0,6	2,1	0,4	1,1	3,1	8,4
0,7	1,9	0,2	1,3	2,9	8,4
0,8	2,0	0,2	1,5	2,8	7,8
0,9	2,9	0,3	1,4	2,2	4,6
1,0	3,9	0,4	0,4	3,3	2,4

Полное количество иодида по числу атомов в разряде

$$m_g^a = \frac{m_e c_0 \mu L}{8 e^2 f N_A} \cdot \sum_{x=0}^R \tau(x) \Delta x, \quad (13)$$

где μ - молекулярная масса добавки, L - длина разрядной трубки, $\tau(x) = \tau_0(x) F(c)$ - полная оптическая толщина по лучу зрения x .

Полное массовое количество иодидов m_g^M вычисляли также по максимуму концентрации молекул, найденной в функции времени в период распада плазмы после выключения разряда. При этом концентрации находили по полному поглощению в системе полос электронного перехода молекул $X^1\Sigma^+ - A^3\Pi_{0,2}$ /9/.

Как видно из табл.2, в пределах ошибки $(m_g^a) = (m_g^M)$, что подтверждает работоспособность метода и косвенно достоверность расчета параметров $P(z)$; расхождения с исходной дозировкой объясняются образованием комплексных соединений типа $Na(MeI_4)$ и удержанием части PI и In в жидкой фазе NaI /9/. Между тем контрольные определения m_g^M в трубках, содержащих только PI или только InI , показали хорошее согласие с исходной дозировкой (табл.2). Наши определения $N_0(r)$ натрия хорошо согласуются с независимыми определениями $N_0(r)$ в аналогичных условиях /10/.

Абсолютная интенсивность излучения в неоднородной плазме рассчитывалась по формуле

$$I(z, x) = \frac{4\pi h c_0 e^2 f}{m_e \lambda_0^5} \int_0^Y P(z, y) N_0(y) dy \exp\left[-\frac{hc_0}{\lambda_0 k T_3} - \frac{Te^2 f}{m_e c_0} \int_0^x P(y) N_0(y) dy\right], \quad (14)$$

где $N_0(y)$ - распределение концентрации поглощающих атомов по лучу x ; $y = (r^2 - x^2)^{1/2}$, $Y = (R^2 - x^2)^{1/2}$; $T_3(r)$ - температура заселения верхнего состояния перехода.

Контур полного поглощения $\Phi(z, x)$ рассчитывался по (10), переписанной для неоднородного источника, контур

$\rho(z, r)$ - в приближениях (1) и (3) в ряде слоев источника.

Т а б л и ц а 2

Количество иодидов (мг), атомы которых обнаружены в разряде (m_g^a) и молекулы которых обнаружены при рекомбинации (m_g^M) в трубках с различной дозировкой TlZ (мг). Ошибка дозировки 15%

TlZ	2 мг	4 мг	6 мг	7 мг	9 мг
m_{TlZ}^a	$1,0 \pm 0,2$	$0,6 \pm 0,1$	$1,3 \pm 0,2$	$1,6 \pm 0,2$	$2,5 \pm 0,4$
m_{InZ}^a	$0,4 \pm 0,1$	$0,3 \pm 0,1$	$0,4 \pm 0,1$	$0,4 \pm 0,1$	$0,4 \pm 0,1$
$m_{NaZ}^a \cdot 10^3$	6 ± 1	6 ± 1	5 ± 1	9 ± 2	5 ± 1
m_{TlZ}^M	$(1,7 \pm 0,3)^*$	$1,3 \pm 0,3$	$1,7 \pm 0,3$	$1,7 \pm 0,3$	$2,9 \pm 0,4$
m_{InZ}^M	$(1,1 \pm 0,1)^*$	$0,4 \pm 0,1$	$0,4 \pm 0,1$	$0,4 \pm 0,1$	$0,4 \pm 0,1$

* Количество иодида, обнаруженное в трубке с дозировкой только TlZ или InZ . Дозировка $InZ - const \sim 1,2 \pm 0,2$. Дозировка $NaZ - const \sim 20 \pm 4$ мг.

При моделировании соответствия с экспериментально наблюдаемыми контурами параметры ρ варьировались, в том числе ΔC_5 и ΔC_{12} . Для иллюстрации некоторые из полученных контуров по $\chi = 0$ для условий, близких к номинальному режиму источника (ДРИ-700), показаны на рис. 2 и 3. Значения абсолютной интенсивности в максимумах расчетных и экспериментальных контуров различаются не более чем на 7%.

Модельные расчеты показали, что для определения концентрации атомов Tl и In с ошибкой 15% и Na с ошибкой 10% при удовлетворительном совпадении $T(z, x)$ и $\Phi(z, x)$

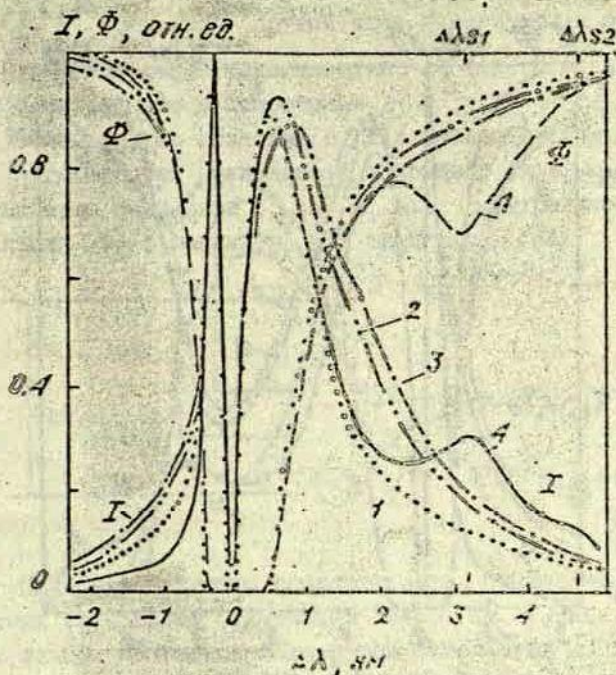


Рис.2 Вид контуров излучения (I) и поглощения (Φ) линии $72535,0 \text{ nm}$, уширенной давлением ртути. (1-3) - расчет при аппроксимации разности $\Delta V(r)$ потенциальных кривых возбужденного и основного состояний эксимера Ti-Hg потенциалом Ван-дер-Ваальса: 1 - $\Delta C_6 = 0,5 \cdot 10^{-57} \frac{\text{эрг} \cdot \text{см}^6}{\text{эрг} \cdot \text{см}^6}$, 2 - $\Delta C_6 = 1,56 \cdot 10^{-57} \text{ эрг} \cdot \text{см}^6$, 3 - $\Delta C_6 = 2,28 \cdot 10^{-57} \text{ эрг} \cdot \text{см}^6$, 4 - эксперимент, $\Delta \lambda_{s1}$, $\Delta \lambda_{s2}$ - положение первого и второго спутников.

с экспериментом может быть использована простая аппроксимация $\Delta V(r)$ потенциалом Ван-дер-Ваальса. При использовании $P_{\text{эд}}(z)$ точность определения N_0 не повышается. Для снижения ошибки необходимо более достоверное описание $P(z)$. В рамках выбранных приближений $P_{\text{зв}}$ и $P_{\text{эд}}$ добиться-

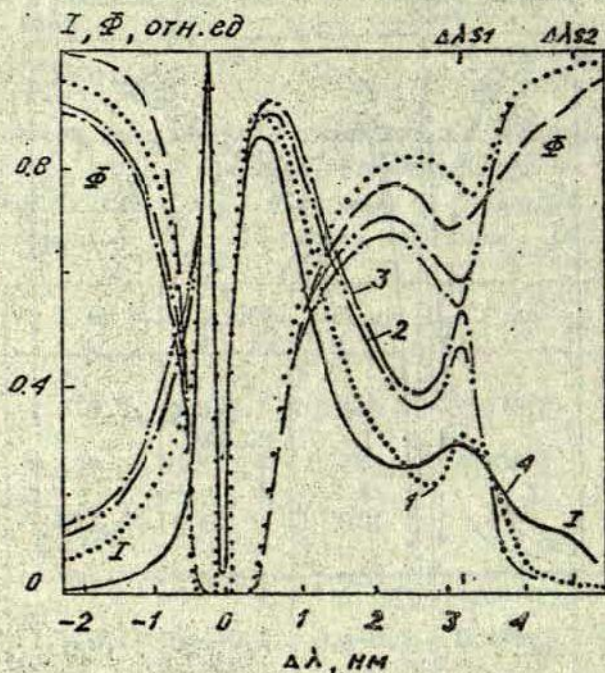


Рис.3 Вид контуров излучения (I) и поглощения (Φ) линии Tl 535,0 нм, уширенных давлением ртути. (1-3) - расчет при аппроксимации разности $\Delta V(\rho)$ потенциальных кривых возбужденного и нижнего состояний эксимера $Tl-Hg$ потенциалом Ленарда-Джонса:

- 1 - $\Delta C_{I2} = 0,027 \cdot 10^{-100}$ эрг·см¹², $\Delta C_6 = 0,5 \cdot 10^{-57}$ эрг·см⁶,
 2 - $\Delta C_{I2} = 0,26 \cdot 10^{-100}$ эрг·см¹², $\Delta C_6 = 1,56 \cdot 10^{-57}$ эрг·см⁶,
 3 - $\Delta C_{I2} = 0,58 \cdot 10^{-100}$ эрг·см¹², $\Delta C_6 = 2,28 \cdot 10^{-57}$ эрг·см⁶,

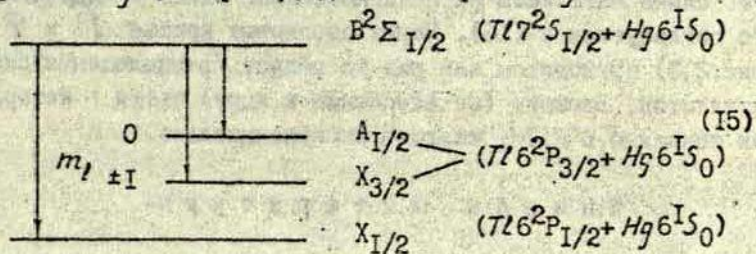
4 - эксперимент,

$\Delta \lambda_{s1}$, $\Delta \lambda_{s2}$ - положение первого и второго сателлитов.

ся в целом по контуру хорошего соответствия с экспериментом не удается. Если достигается совпадение в красном кры-

ле, то в синем крыле возрастает расхождение, причем всегда $(\frac{\rho^+}{\rho^-})^{экс} < (\frac{\rho^+}{\rho^-})^{теор}$. Крутой спад синего крыла описывается экспоненциальной зависимостью $\rho(z)$. Этот вопрос требует специального рассмотрения.

Очевидно, по аналогии с /II/ взаимодействие пар $Tl-Hg$, $In-Hg$ следует исследовать в крыльях линий с учетом расщепления состояния $^2P_{3/2}$ в поле нейтрального атома уширителя Hg ; например, для эксимера $TlHg$:



Подобные переходы сопровождаются появлением синих и красных сателлитов (спутников-полос) на крыльях резонансных линий. Положение максимумов сателлитов $\Delta\lambda_s$ по отношению к λ_0 нами измерялось в трубках с очень малыми примесями иодидов:

Tl	377 нм	$\Delta\lambda_s, \text{Å} = +23,8 \pm 0,4; -4,2 \pm 0,2$
	535 нм	$\Delta\lambda_s, \text{Å} = +32,2 \pm 0,4; +47 \pm 1; -6; -2,2 \pm 0,2$ (16)
In	410 нм	$\Delta\lambda_s, \text{Å} = +23,7 \pm 0,4; -4,0 \pm 0,1$
	451 нм	$\Delta\lambda_s, \text{Å} = +24,7 \pm 0,3; +34 \pm 1; -6; 24,5 \pm 0,1$

В условиях разряда, как показано выше, появление сателлитов высоких порядков P_2, P_3 и т.д. не ожидается, поэтому обнаружение двух сателлитов на красных крыльях наблюдаемых контуров линий $In 451, Tl 535$ нм, по-видимому, подтверждает наличие расщепления на два подуровня: интенсивности сателлитов относятся как 2 : 1, т.е. как статистические веса подуровней ($m_l = \pm 1, g = 2; m_l = 0,$

$g = 1$).

Таким образом, особенности распределения спектральной интенсивности в крыльях I и Φ можно объяснить наличием интенсивностей спутников. При расчетах $P(z)$ необходимо учитывать перекрытие каждой пары спутников.

Характерно также, что с ростом массы атома уширителя $\Delta \lambda_s^{кр}$ быстро возрастает, а $\Delta \lambda_s^{сш}$ - уменьшается /11/, т.е. синие спутники располагаются все ближе к ядру линии, что согласуется с (16). Коротковолновые крылья I и Φ (рис.2,3) приходятся как раз на область расположения синих спутников, внешние (по отношению к ядру) части которых, как показано в /12/, спадают экспоненциально.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

1. Спектроскопия газоразрядной плазмы /Под.ред.С.Э.Фриша. Л.:Наука,1970. 361 с.
2. Хахаев А.Д., Луизова Л.А., Соляникова В.А., Вдовин В.Г. - В кн.: Сб.докл.Междунар.конф. по физике и технике плазмы,Карл-Маркс-Штадт (ГДР),14-18 окт.,1974 ,с.37-54.
3. Самсонова Н.А., Емельянов Н.И., Вдовин В.Г. -Электротехн. пром., (СИ), 1976, вып.6, с.1-2.
4. Grycuk T., Wierzbicka J. - Opt.Comm.,1975,vol.14,N 3, p.348-352.
5. Szudy J., Baylis W. - J.Quant.Spectr.Rad.Transf., 1975, vol.15, p.641-668.
6. Хиндмарш У.Р., Фарр Д.М. Столкновительное уширение спектральных линий нейтральными атомами.Оксфорд; Пергамон, 1972. 214 с.
7. Экимерные лазеры /Под ред.Ч.Роудза. М.:Мир,1981,245с.
8. Вдовин В.Г. - В кн.:Диагностика плазмы по контурам спектральных линий (оптика неоднородных сред). Петро-заводск: ПГУ им.О.В.Куусинена,1977, с.109-114.
9. Вдовин В.Г. Экспериментальное исследование физических условий в плазме разряда высокого давления в смеси паров ртути с добавками металлогалоидов: Дис. на соиск.

учен. степ. канд. физ.-мат. наук. М.: ФИАН, 1981. 158 с.

10. Луизова Л.А. - Опт. и спектр., 1975, т.38, вып.4, с.639 - 641.
11. Cheron B., Scheps R., Gallagher A. - J.Chem.Phys., 1976, vol.65, N 1, p.326-335.
12. Вайнштейн Л.А., Собельман И.И., Юков Е.А. Возбуждение атомов и уширение спектральных линий. М.: Наука, 1979, 319 с.

А. С. Агапов, Г. М. Смирнова,
В. И. Хуторщиков
(Ленинград)

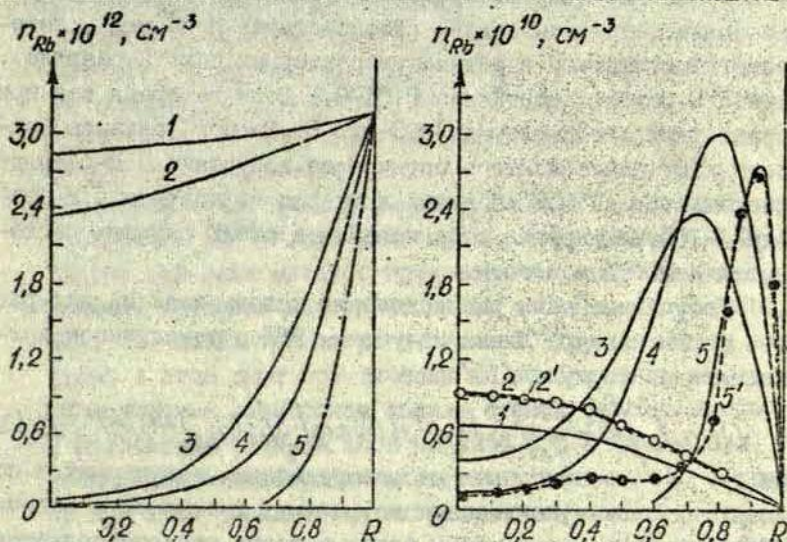
ФОРМИРОВАНИЕ ЛИНИЙ ИЗЛУЧЕНИЯ БЕЗЭЛЕКТРОДНЫХ СПЕКТРАЛЬНЫХ ЛАМП В Е- И Н-РАЗРЯДАХ

В работе /1/ рассмотрены принципы построения и основные особенности источников света на основе высокочастотных безэлектродных спектральных ламп (ВЕЛ). При этом было отмечено, что возможны два сильно различающихся режима работы ВЕЛ, так называемые Е- и Н-разряды. Для выбора режима разряда при разработке источника света необходимо рассмотреть особенности спектральных характеристик этих режимов, и прежде всего формирование контура линий излучения. Сравнительно малое количество экспериментальных данных из-за сложности исследования контуров линий, излучаемых ВЕЛ в Н-разряде /2-4/, и полное отсутствие таковых для Е-разряда побудило нас в качестве метода исследования выбрать моделирование процесса формирования контуров излучения в Е- и Н-разрядах численным решением соответствующей граничной задачи с помощью ЭВМ.

Напомним, что понятие Е- и Н-разрядов применительно к разряду ВЕЛ было введено в /5/ по аналогии с /6/ по результатам исследования зажигания разряда, изложенным в /7/. В /5, 8/ показано, что особенности разрядов определяются различием в концентрации электронов, которая составляет менее 10^{11} эл. см⁻³ в Е-разряде и более 10^{12} эл. см⁻³ в Н-разряде. Поэтому при расчете параметров разряда ВЕЛ в обоих случаях использована идентичная система уравнений баланса электронов, атомов рубидия в основном и возбужденном состояниях и баланса энергии, аналогичная приведенной в /9/, но дополненная уравнением баланса атомов криптона в основ-

ном и возбужденном состояниях и переписанная для сферической системы координат. Расчет выполнен для лампы диаметром 13 мм, наполненной парами рубидия и криптоном при давлении 1,3 мм рт. ст.

Особенности решения системы уравнений и некоторые результаты расчетов при концентрациях электронов меньших $1 \cdot 10^{11}$ эл. см⁻³ подробно описаны в /10/.



Фиг. 1 Распределения атомов рубидия в основном (а) и возбужденном (б) состояниях по радиусу лампы, рассчитанные (1-5) и экспериментально полученные (2^I, 5^I): 1-концентрация электронов $n_e = 8,5 \cdot 10^{10}$ эл. см⁻³; мощность разряда $W = 0,081$ Вт; 2- $n_e = 9,73 \cdot 10^{10}$ эл. см⁻³, $W = 0,103$ Вт; 3- $n_e = 5 \cdot 10^{12}$ эл. см⁻³, $W = 0,303$ Вт; 4- $n_e = 1 \cdot 10^{13}$ эл. см⁻³, $W = 0,557$ Вт; 5- $n_e = 1 \cdot 10^{13}$ эл. см⁻³, $W = 1,23$ Вт.

2^I- $W = (0,10 \pm 0,05)$ Вт (Е-разряд); 5^I- $W = (1,5 \pm 0,5)$ Вт (Н-разряд). Для 2^I и 5^I - масштаб произвольный.

Из рис. 1, где приведены результаты расчета распреде-

ления атомов рубидия в зависимости от концентрации электронов n_e , хорошо видно, что при увеличении концентрации электронов атомы рубидия в основном и в возбужденном состоянии все больше концентрируются у стенок баллона лампы. На рис. I приведены также данные о распределении атомов рубидия в возбужденном состоянии, полученные экспериментально на установке "Свет" в ПГУ им. О. В. Куусинена (зависимости 2^I и 5^I). Таким образом, при малых концентрациях электронов характер распределения близок к наблюдаемому в Е-разряде, а при наибольших соответствует Н-разряду. Интересно отметить, что в режимах, характерных для Е-разряда, мощность разряда составила 0,01-0,1 Вт, в то время как при характерных для Н-разряда 0,3-5,0 Вт. Расчет баланса мощности /10/ показал, что в оптическое излучение в Е-разряде превращается до 85% вводимой в разряд мощности, а в Н-разряде - 10%. На упругие столкновения в обоих случаях расходуется лишь 1% мощности.

Полученные нами распределения использовались для расчета формы контура линии излучения ВВЛ в однолучевом приближении по формуле /11/

$$I(\nu) = I_0 \int_0^{\ell} 4\pi r^2 dr \int_0^{\ell_0} [f_e(r)] P_e(\nu) \exp[-S \int_0^{\ell} P_a(\nu) f_a(r') dr'] d\ell, \quad (1)$$

где f_e , f_a^0 - нормированные распределения излучающих и поглощающих атомов, полученные из решения граничной задачи /10/; ℓ_0 , ℓ - длины ходов, вдоль которых распространяется луч света; $P_e(\nu)$, $P_a(\nu)$ - форма контура излучающих и поглощающих атомов соответственно, причем предполагалось, что $P_a(\nu) = P_e(\nu)$; $S = \frac{4\pi e^2}{mc} f_{ik} \bar{n}_a$, m ; e - масса и заряд электрона, c - скорость света, f_{ik} - сила осциллятора, \bar{n}_a - усредненная по лучу наблюдения концентрация поглощающих атомов.

Программа расчета позволяла исследовать суммарный контур, а также форму контура линии из различных областей лампы.

Для расчета контура необходимо ввести в (1) исходный профиль, который определяется локальными условиями в плаз-

ме: электрическими и магнитными полями возбуждения, внешними и внутриплазменными полями, электрическим полем электронов и ионов, буферным газом, естественным временем жизни, распределением атомов по скоростям. Рассмотрим последовательно вклад этих характеристик.

Поскольку для линий рубидия 794,8 и 780 нм постоянная Штарка $\beta \approx (2-3) \cdot 10^{-5} \text{ см}^{-1} \cdot \text{В}^{-2} \cdot \text{см}^2 / 12$, а напряженность возбуждающего электрического поля по [7] составляет не более $400 \text{ В} \cdot \text{см}^{-1}$, сдвиг и уширение, ими вызываемые, имеют значение не более $2 \cdot 10^{-2} \text{ МГц}$. Напряженность магнитного поля составляет не более $1000 \text{ А} \cdot \text{м}^{-1}$, что приводит к сдвигу и уширению не более $3 \text{ МГц} / 13$. Влияние магнитного поля Земли на порядок меньше.

Плазменные поля достигают $1 \text{ кВ} \cdot \text{см}^{-1}$ при концентрации электронов $10^{13} \text{ эл. см}^{-3}$, что приводит к сдвигу $\sim 0,1 \text{ МГц}$. Однако эти поля следует принимать во внимание лишь в слое, толщина которого достигает длины дебаевского экранирования, т.е. находится на расстоянии 10^{-3} см от стенки баллона. Атомы в этом слое практически не возбуждаются из-за малой концентрации электронов вблизи стенок баллона лампы [1], а оптическая толщина слоя при $T \leq 400 \text{ К}$ меньше 0,2. При уменьшении концентрации электронов толщина его возрастает, но при этом уменьшается напряженность поля.

Уширение \mathcal{J} и сдвиг Δ , вызываемые столкновениями с электронами, рассчитываются по формулам Вейскопфа-Линдхольма [14]:

$$\mathcal{J} = 1,82 C_4^{2/3} \bar{v}^{1/3} n_e; \quad \Delta = 1,56 C_4^{2/3} \bar{v}^{1/3} n_e, \quad (2)$$

где C_4 - константа квадратического эффекта Штарка, $\text{см}^4 \cdot \text{с}$.

Результаты расчета сдвигов и уширений по (2) представлены в табл. I. Значения констант квадратического сдвига определяли по коэффициентам Штарка из [12].

Возмущение атомами инертного газа приводит к сдвигу и уширению спектральных линий с константами сдвига и уширения в случае криптона $(-5 \pm 1) \text{ МГц} \cdot \text{мм рт. ст.}^{-1}$ и $(17,3 \pm 0,9) \text{ МГц} \cdot \text{мм рт. ст.}^{-1}$ соответственно [15]. Следовательно, при $1,8 \text{ мм рт. ст.}$ сдвиг составит $\Delta = -9 \text{ МГц}$, а уширение $\mathcal{J} = 31 \text{ МГц}$.

Сдвиги Δ и уширения γ резонансных линий
рубидия электронами

n_e , эл. см ⁻³	γ , МГц	Δ , МГц
$1 \cdot 10^{12}$	0,093	0,081
$3 \cdot 10^{13}$	0,279	0,243
$1 \cdot 10^{13}$	0,93	0,81
$3 \cdot 10^{13}$	2,79	2,43

Естественное уширение, по [16], составляет 5,3 МГц для линии с длиной волны 780 нм и 5,5 МГц для $\lambda = 794,6$ нм.

Форма контура, возникающего из-за столкновений с атомами, электронами, а также из-за конечности времени жизни возбужденного состояния, является дисперсионной. Контур, возникающий вследствие движения атомов, имеет гауссову форму и определяется температурой газа, последняя же обусловливается температурой поверхности баллона лампы и градиентом температуры по объему лампы и по стеклу баллона. Судя по результатам исследования теплового режима ВБЛ [1, 17], температура баллона составляет 160°C при мощности разряда 0,8 Вт, температуре поверхности термостата 110°C и радиусе лампы 6,5 мм. Считая, что тепловая мощность выделяется по объему равномерно, причем на разогрев расходуется в соответствии с [10] 1% мощности разряда, по формуле

$$W = \lambda \frac{S}{l} \Delta T, \quad (3)$$

где λ — теплопроводность газа; S — поверхность лампы; l — толщина излучающего слоя, можно оценить перепад температуры в излучающем слое. При мощности разряда $W = 0,8$ Вт $\Delta T = 1^\circ\text{C}$, а при $W = 4$ Вт $\Delta T = 5^\circ\text{C}$. На стекле при его толщине 0,5 мм перепад $\delta T = 3^\circ\text{C}$ при $W = 0,8$ Вт и $\delta T = 15^\circ\text{C}$ при $W = 4$ Вт. В Е-разряде на разогрев расходуется примерно в

10 раз меньшая мощность, и градиенты температуры несущественны. Температура газа практически определяется температурой термостата лампы. В результате при $T=367$ К в Е-разряде ширина доплеровского контура $\gamma^d = 554$ МГц, а в Н-разряде $\gamma^d = 604$ МГц.

Таким образом, в качестве исходного профиля был взят фойгтовский контур с параметрами, определяемыми локальной температурой, давлением буферного газа, естественным временем жизни и концентрацией электронов /в Н-разряде/. При $T=367$ К в Е-разряде параметр a контура Фойгта был равен 0,066, а в Н-разряде $a=0,062$.

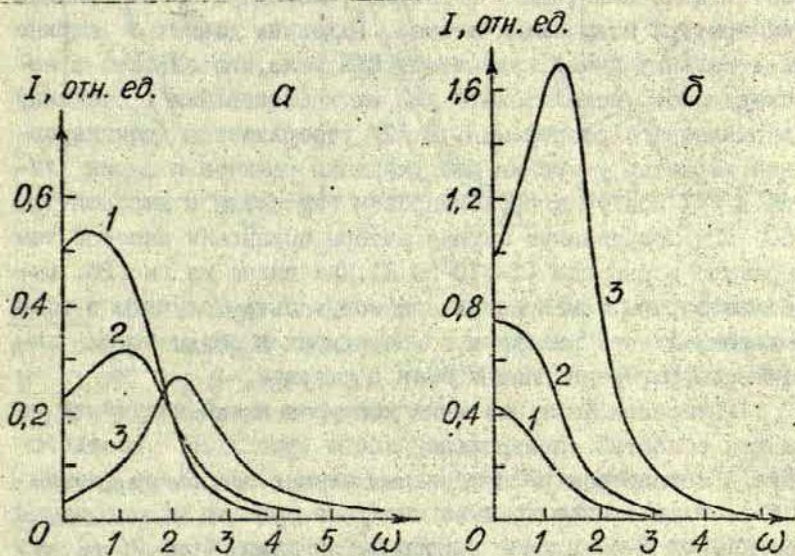


Рис. 2 Рассчитанные контуры линий излучения при разных температурах (1- $T=367$ К, 2- $T=380$ К, 3- $T=400$ К) и концентрациях электронов (а- $n_e=9,73 \cdot 10^{10}$ эл. см⁻³, Е-разряд; б - $n_e=1 \cdot 10^{13}$ эл. см⁻³, Н-разряд). $\omega = 2\sqrt{\ln 2} \delta_1/\delta_0$, где δ_1^2 - лоренцовское уширение, δ_0^2 - доплеровское уширение.

Результаты расчета контуров линии излучения приведены на рис. 2. Анализ графиков показывает, что интенсивность

излучения в Е- и Н-разрядах при низких температурах ($T = 367 \text{ K}$) примерно одинакова (в Е-разряде даже несколько выше), а при повышении температуры интенсивность излучения Н-разряда становится выше. Это объясняется характером распределения атомов по объему лампы. Рост интенсивности излучения при повышении температуры ограничивается реабсорбцией излучения, которая может быть уменьшена при увеличении концентрации электронов (рис. 2), т.е. при увеличении мощности разряда I/I_0 .

Интересно отметить, что ширина линий, излучаемых в Е-разряде в оптимальном, с этой точки зрения, режиме, оказывается даже ниже, чем в Н-разряде, благодаря более низкой температуре излучающих атомов. Надежных данных о ширине спектральных линий, излучаемых ВВЛ, мало, что связано с необходимостью использовать для их исследования технику сверхвысокого разрешения. В [2] утверждается доплеровский характер уширения без указания режимов и ширин линии. В [4] контур аппроксимирован гауссовым с шириной $(750 \pm 50) \text{ МГц}$. Полученную ширину авторы приписали высокой температуре в разряде ($T = 710 \pm 50 \text{ K}$). Как видно из рис. 26, подобные ширины линий излучения могут быть получены в обычных режимах при реальных температурах и объясняются характером распределения атомов в разряде.

Интересен факт различия контуров линий излучения из разных областей спектральной лампы (рис. 3). В соответствии с характером распределения атомов по объему лампы в Е-разряде самопоглощение наступает раньше на оси лампы (рис. 3а), в Н-разряде — на периферии лампы (рис. 3б, в), что и приводит к различию в излучаемых контурах. Существенно, что при самообращенном суммарном контуре линии, излучаемые из центральных областей лампы, могут быть несообращенными (рис. 3в). Вследствие этого эффекта форма контура лампы должна зависеть от положения лампы по отношению к фокусирующей системе.

Любопытным следствием высокой неоднородности распределения атомов в Н-разряде является наличие доплеров —

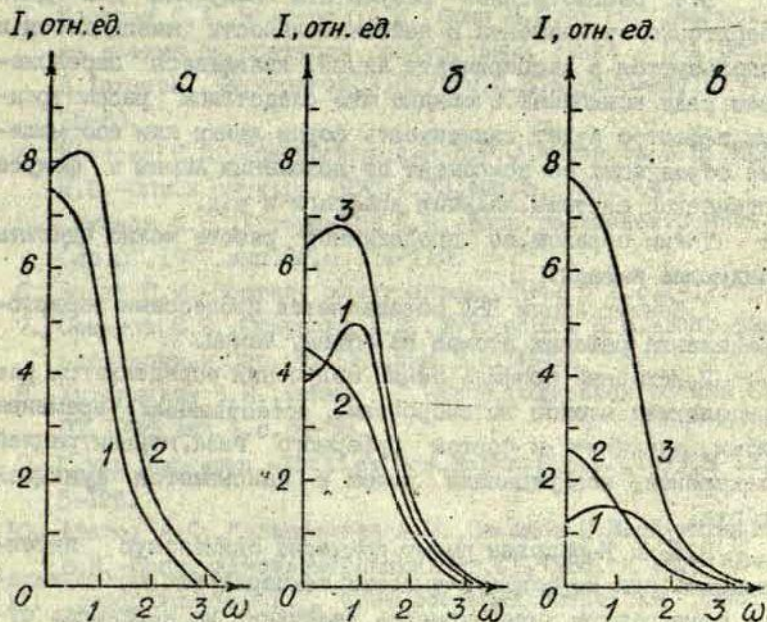


Рис.3 Форма контура линий излучения из периферии лампы (1), из центра лампы (2), суммарного контура (3): а - E-разряд, $W = 0,081$ Вт; б - H-разряд, $W = 1,4$ Вт; в - H-разряд, $W = 1,69$ Вт. Обозначения те же, что и на рис.2.

ского сдвига линий излучения, на что было указано в [1, 18]. Действительно, за счет направленного движения атомов, возникающего из-за большего градиента плотности в H-разряде.

$$\vec{\Gamma} = -D \nabla n, \quad (4)$$

где $\vec{\Gamma}$ - поток атомов, D - коэффициент диффузии, n - концентрация атомов, атомы у стенки и в объеме лампы могут иметь сдвиг по частоте (30-50) МГц /18/. Величина сдвига зависит от положения лампы по отношению к фокусу линзы, так как сдвиг с противоположных частей лампы направлен в разные стороны.

Все рассмотренные результаты получены для одной сверхтонкой компоненты. В действительности наблюдаются и используются в эксперименте линии, являющиеся переложением ряда компонент. Очевидно, что следствием рассмотренных эффектов будет зависимость формы линии или соотношения образующих ее компонент от положения лампы в фокусе оптической системы, наличия диафрагм и т.д.

Таким образом, по проделанной работе можно сделать следующие выводы:

1. Контур линии ВВЛ определяется процессами перераспределения рабочих атомов по объему лампы.

2. Исходный профиль линии излучения определяется распределением атомов по скоростям, естественным временем жизни, давлением и сортом буферного газа, концентрацией электронов, возбуждающим полем и описывается функцией Фойгта.

3. Е- и Н-разряды имеют примерно одинаковую интенсивность при не слишком высоких температурах, при повышении температуры интенсивность излучения из Н-разряда существенно возрастает.

4. Форма линий излучения из разных областей лампы разная. В Е-разряде реабсорбция сильнее в центральных лучах, в Н-разряде - в периферийных.

5. При прецизионных измерениях и при использовании ламп в оптической накачке особое внимание следует обращать на взаимное положение лампы и линзы. Небольшая невоспроизводимость в положении ламп может быть причиной невоспроизводимости параметров всего устройства, что следует иметь в виду при разработке устройств, использующих спектральные лампы.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

1. Калашникова А.И., Хуторщиков В.И. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов /Под ред. Э.К. Краульнй . Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1981, с. 164-173.
2. Полушкин И., Сорин Е., Федотов Ю. - В кн.: Тезисы 8 Сибир-

- ского совещания по спектроскопии. Томск, 1974, с. 176-177.
3. Изотова С.А., Канцеров А.И., Фриш М.С. - В кн.: Диагностика плазмы по контурам спектральных линий / Под ред. А. Д. Хахаева. Петрозаводск: ПГУ им. О.В. Куусинена, 1977, с. 76-80.
 4. Изотова С.Л., Преображенский Н.Г., Тамбовцев Б.З., Фриш М.С. - Опт. и спектр., 1975, т. 33, вып. 5, с. 842-847.
 5. Семенов С.В., Хуторщиков В.И. - Вопр. радиоэлектроники. Сер. ОТ, 1977, вып. 12, с. 116-119.
 6. Бабат Г.И. - Вестник электропром., 1942, № 2, с. 1-12.
 7. Семенов С.В., Смирнова Г.М., Хуторщиков В.И. - Вопр. радиоэлектроники. Сер. ОТ, 1981, вып. 3, с. 90-94.
 8. Хуторщиков В.И., Шина Г.Г. - Вопр. радиоэлектроники. Сер. ОТ, 1978, вып. 4, с. 54-58.
 9. N. van Tongeren. - Philips Res. Repts. Suppl., 1975, N 12, p. 5-128.
 10. Агапов А.С., Калашникова А.И., Семенов С.В., Хуторщиков В.И. - Вопр. радиоэлектроники. Сер. СТ, 1983, вып. 4, с. 60-69.
 11. Преображенский Н.Г. Спектроскопия оптически плотной плазмы. Новосибирск: Наука, 1971. 178 с.
 12. Бонч-Бруевич А.М., Ходовой В.А. - УФН, 1967, т. 93, вып. 1, с. 71-110.
 13. Гершун В.В., Хуторщиков В.И., Якобсон Н.Н. - Опт. и спектр., 1971, т. 31, вып. 6, с. 866-869.
 14. Вайнштейн Л.А., Собельман И.И., Юков Е.А. Возбуждение атомов и уширение спектральных линий. М.: Наука, 1979. 319 с.
 15. Казанцев С.А., Калитеевский Н.И., Рин О.М. - Опт. и спектр., 1978, т. 44, вып. 4, с. 638-643.
 16. Feichtner J., Gallagher J., Mizushima M. - Phys. Rev., 1967, v. 164, N 1, p. 44-48.
 17. Семенов С.В., Хуторщиков В.И. - В кн.: РИПОРТ ВАНМ, 1976, № 3-4649.
 18. Луизова Л.А., Трухачева В.А., Семенов С.В., Хуторщиков В.И. - В кн.: Тезисы докл. I Всесоюзн. симпозиума по повышению точности квантовых стандартов частоты. М.: ВНИИТРИ, 1980, с. 78-79.

Д.К. Берзиня, А.Я. Скудра
ЛГУ им. П. Стучки
(Рига)

ИССЛЕДОВАНИЕ ОПТИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ ВЫСОКОЧАСТОТНЫХ БЕЗЭЛЕКТРОДНЫХ ЛАМП ГЕЛИЯ

В настоящее время известны высокочастотные безэлектродные лампы (ВЕЛ) на основе примерно 50 химических элементов. Инертные газы используются в этих лампах в качестве буферных, но ламп на чистых инертных газах пока мало, хотя для решения ряда научных и прикладных задач они необходимы, например, как источник света при постройке прецизионного гониометра-спектрометра.

В настоящей работе разработана технология изготовления ВЕЛ на основе гелия и проведены предварительные измерения спектральных характеристик. Известно, что использование гелия в качестве буферного газа заметно повышает спектральную мощность ВЕЛ, однако при этом ограничивается срок их службы /1,2/. По данным работы /3/, такие лампы работают лишь 2 ч. Причиной быстрого выхода ВЕЛ из строя является диффузия атомов гелия через горячие стенки баллона. Это подтверждается, в частности, тем, что при уменьшении содержания буферного газа в баллоне лампы сокращается срок ее работы /4/.

Нами разработана технология изготовления ВЕЛ на основе гелия и проведены измерения спектральных характеристик этих источников. При изготовлении ВЕЛ особое внимание уделялось чистоте газа и заготовок баллонов ламп. С целью увеличения срока службы баллоны изготавливали из стекла при толщине стенок 1 мм. Лампы имели форму шара или цилиндра диаметром 22 ± 1 мм. ВЕЛ помещали в индуктор возбуждающего генератора ПВЕЛ-3М. Срок работы изготовленных ламп

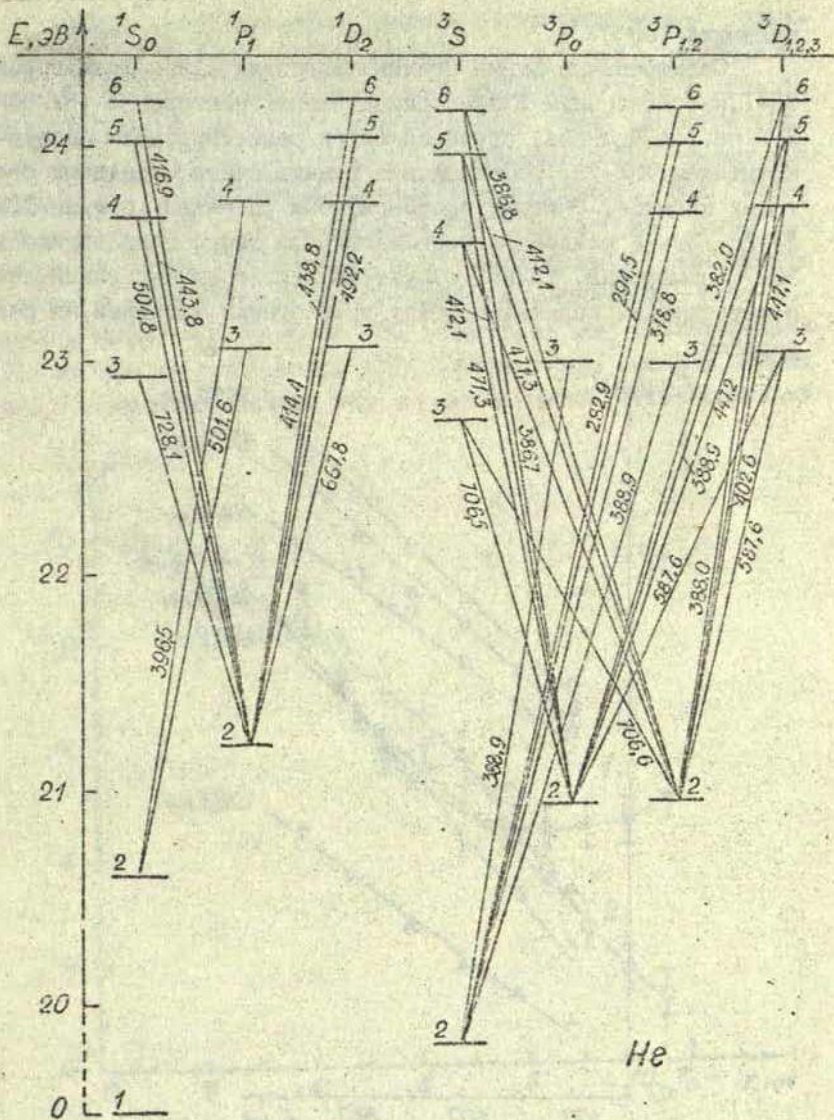


Рис. I Схема уровней гелия.

превышал 100 н.

Спектральные линии гелия выделяли монохроматором СД-1, изготовленным в экспериментальных мастерских НИИОФИ ЛГУ им.А.А.Жданова, световой поток регистрировали фотоумножителем ФЭУ-79, работающим в режиме счета отдельных световых квантов, счетчик фотонов был сопряжен с мини-ЭВМ ДЗ-28 /5/. В каждой экспериментальной точке производилось 50-70 измерений. Тонкая структура спектральных линий, соответствующих переходам между триплетными уровнями, не разрешалась.

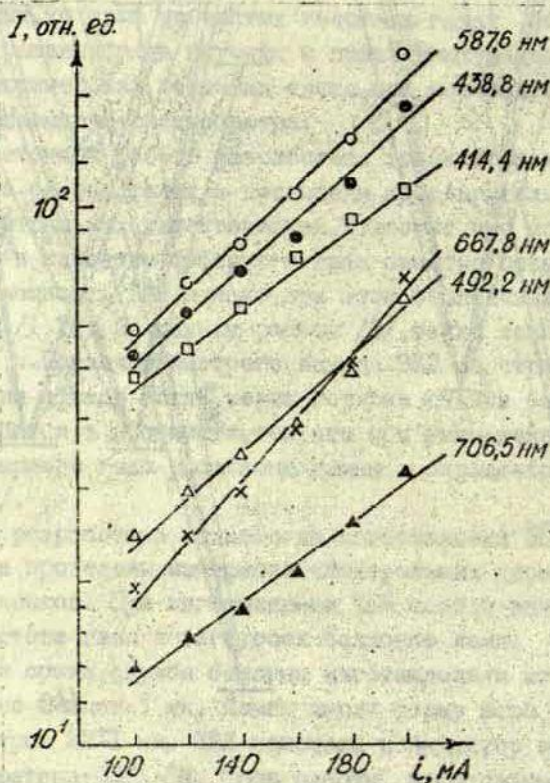


Рис.2 Зависимость относительной интенсивности спектральных линий ВЛ гелия от тока генератора.

Схема энергетических уровней и регистрируемых спектральных переходов гелия приведена на рис.1. Измерялась относительная интенсивность спектральных линий в области 280-730 нм. Зависимости интенсивности ряда спектральных линий от тока генератора для ВЕЛ цилиндрической формы приведены на рис.2 в полупологарифмическом масштабе. Как видно из рисунка, экспериментальные точки достаточно точно ложатся на прямую. Это означает, что наблюдаемые зависимости близки к экспоненциальным. Аналогичные результаты были получены ранее при исследовании спектральных характеристик ВЕЛ на основе теллура [6], где, однако, угол наклона прямых был значительно больше, чем в случае гелия. Такое различие

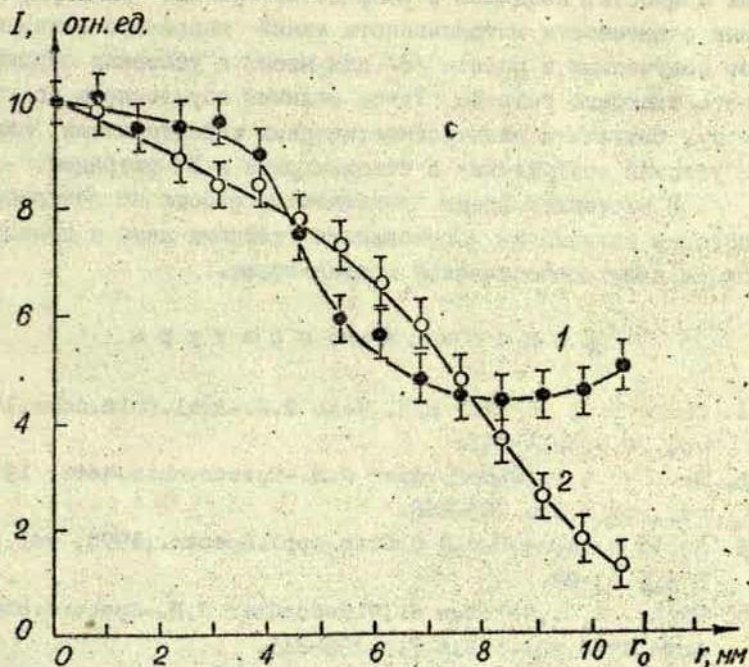


Рис.3 Радиальные зависимости интенсивности линии $\lambda = 587,6$ нм при мощности генератора 58,3 Вт(1) и 89,5 Вт(2). r_0 - радиус границы разряда.

можно объяснить тем, что с возрастанием мощности генератора повышается температура стенок баллона, а это приводит к возрастанию концентрации атомов теллура в рабочем объеме. Концентрация нормальных атомов гелия в баллоне не зависит от внешних условий, и измеряемая интенсивность спектральных линий определяется только скоростью протекания различных элементарных процессов в газоразрядной плазме.

Для ВЕЛ цилиндрической формы были изучены также радиальные зависимости интенсивности спектральных линий. Для этих целей использовалась автоматическая измерительная установка, описанная в работе /7/. На рис.3 приведены такие зависимости для линии $\lambda = 587,6$ нм при двух значениях мощности, вводимой в разряд. Измеренные нами радиальные зависимости интенсивности линий несколько отличаются от полученных в работе /8/ для неона в условиях стационарного тлеющего разряда. Такое отличие обусловлено, по-видимому, различием электроимпедантических характеристик плазмы и условий возбуждения в стационарном и ВЧ-разрядах.

В настоящее время продолжается работа по совершенствованию технологии изготовления гелиевых ламп и проводится их спектроскопическое исследование.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

1. Cooke D.O., Dagnall R.M., West T.S. - Anal. Chim. Acta, 1971, vol. 54, p. 381-395.
2. Browner R.F., Winefordner J.D. - Spectrochim. Acta, 1973, vol. 28B, N 8, p. 263-288.
3. Scott R. Goode, David C. Otto - Appl. Spectr., 1978, vol. 32, N 1, p. 65-69.
4. Michel R.G., Coleman J., Winefordner J.D. - Spectrochim. Acta, 1978, vol. 33B, N 7, p. 195-215.
5. Круминьш А.П., Скудра А.Я. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов /Под ред. Э.К. Краулинь. Рига: ТУ им. П. Стучки, 1981, с. 174-177.
6. Берзиня Д.К., Берзиньш У.В., Путиня С.Я. - В кн.: Процессы

переноса энергии в парах металлов /Под ред. Э.К. Крау-
линь/. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1981, с. 150-156.

7. Кольмясу И.И., Хахаев А.Д. - В кн.: Диагностика плазмы по
контурам спектральных линий. Петрозаводск; ПГУ им. О.В. Ку-
усинена, 1977, с. 96-108.
8. Микенин В.М. - Опт. и спектр., 1979, т. 46, вып. 6, с. 1209 -
1210.

ПРОБЛЕМЫ СОЗДАНИЯ МНОГОЭЛЕМЕНТНЫХ ВЫСОКОЧАСТОТНЫХ БЕЗЭЛЕКТРОДНЫХ ЛАМП

Высокочастотные безэлектродные лампы как наиболее интенсивные источники атомарного спектра находят широкое применение в атомно-абсорбционной и атомно-флуоресцентной спектроскопии /1/.

В последнее время растет интерес к созданию многоэлементных высокочастотных безэлектродных ламп, излучающих аналитические линии нескольких элементов. Эти лампы позволяют значительно упростить и ускорить процесс атомно-абсорбционного анализа. Известные многоэлементные лампы с полым катодом /1/, в которых излучение спектральных линий нескольких элементов обеспечивается изготовлением материала катода из сплава интересующих элементов или переключением катодов, изготовленных из различных материалов. В литературе имеется также несколько сообщений о многоэлементных высокочастотных безэлектродных лампах /2,3,4/, изготовленных на основе галогенидов, сплавов или ртутных амальгам, однако данные о технологии изготовления ламп и количестве вводимых элементов, приводимые в этих работах, противоречивы. В монографии Прайса по атомно-абсорбционному анализу /5/ даже утверждается, что изготовить многоэлементные высокочастотные безэлектродные лампы невозможно.

Высокочастотные лампы наряду с конструктивными преимуществами (предельная простота и отсутствие внутри баллона электродов) имеют особенности, усложняющие их изготовление с многоэлементным наполнением. Основные трудности воз-

никают из-за того, что высокочастотное поле используется как для возбуждения паров в лампе, так и для нагревания лампы и поддержания давления паров возбуждаемого элемента на необходимом уровне. Условия высокочастотного разряда сильно меняются в зависимости от давления и состава пара, что требует тщательной стабилизации параметров высокочастотного генератора, а также определяет требования к наполнению лампы. По данным литературы, можно выделить два основных направления при выборе компонентов наполнения. Одно связано с введением в лампу элементов, значительно различающихся по давлению пара /3/. В таком случае спектр необходимого элемента получают подбором режима высокочастотного генератора или термостатированием лампы. Второй подход основан на подборе близких по летучести элементов либо элементов, образующих соединение или сплав. При возбуждении наблюдаются одновременно спектры всех компонентов /4/. Необходимо отметить, что в любом случае требуется строгое дозирование элементов наполнения - для обеспечения горения лампы в широком диапазоне высокочастотных мощностей и для обеспечения необходимого отношения интенсивностей при одновременном возбуждении. Ограничивать количество наполнения особенно важно для легколетучих компонентов и галогенов, поскольку давление паров легколетучих компонентов может превысить границы устойчивого горения высокочастотного разряда при возбуждении более труднолетучих компонентов, а галогены являются сильными тушителями разряда. По данным /4/, давление паров галогена в лампе не должно превышать 13 Па.

Многоэлементные высокочастотные безэлектродные лампы на основе комбинаций галогенидов металлов являются одними из наиболее перспективных, поскольку галогениды металлов имеют близкие химические свойства, близкие значения давления паров, после разложения в разряде легко рекомбинируют и мало взаимодействуют с баллоном лампы из кварцевого стекла. Кроме того, галогениды металлов широко используются в ртутных лампах высокого давления в качестве

присадок и их поведение в разряде достаточно изучено. Однако на основании этих сведений невозможно даже качественно описать процессы и равновесие в высокочастотной безэлектродной лампе, содержащей несколько галогенидов, и приходится отыскивать оптимальные количества галогенидов и металлов эмпирически. Следует учитывать и то, что в процессе эксплуатации в лампах с галогенидами металлов накапливается свободный галоген /4/, что ухудшает параметры ламп, и в итоге выводит лампы из строя. Нам удалось устранить это введением металлов в избытке, а галогена — в строго дозированном количестве. Таким образом, в лампе обеспечивается постоянное количество галогенида и не происходит накопления свободного галогена. При наполнении металлы берутся отдельно или в виде сплава, а галоген вводится в виде галогенида калия или натрия /6/.

Основные оптические характеристики многоэлементных высокочастотных безэлектродных ламп — интенсивность и ширина аналитических линий мало отличаются от значений, полученных для одноэлементных ламп. По данным Хаарсма /2/, эти различия не превышают 25%. Это можно объяснить тем, что оптические характеристики высокочастотных безэлектродных ламп определяются в основном концентрацией излучающих атомов в лампе. Нельзя исключить также возможности взаимного влияния элементов наполнения. Например, ртуть и цинк легко возбуждаются и подавляют возбуждение других элементов, поэтому необходимо ограничивать их количество в лампе. В комбинированных лампах $Te + Se$ и $Te + J$ при смене партнера от Se к J отношение интенсивностей спектральных линий теллура 225,9 нм: 238,6 нм, соответствующих переходам с уровней 6^5S_2 (5,49 эВ) и 6^3S_1 (5,78 эВ), изменилось от 0,7:1 до 1,2:1.

Были изготовлены высокочастотные безэлектродные лампы, содержащие $Pb + Sn + Zn + KJ$, $Bi + Pb + Sn + KJ$, $Bi + Cd + KJ$, $Zn + Cd + Sb$ и другие комбинации тяжелых металлов. Исследование их показало, что лампы горят стабильно и излучают атомарные спектральные линии всех металлов напол-

нения, а также спектральные линии йода (лампы, содержащие КЭ). При этом дополнительно наблюдается способность цинка и олова уменьшать взаимодействие галогенида свинца с баллоном лампы из кварцевого стекла.

Испытания ламп показывают, что изготовление многоэлементных высокочастотных безэлектродных ламп возможно и перспективно, при этом состав наполнения необходимо выбирать, учитывая как физико-химические свойства элементов наполнения, так и их взаимодействие и влияние на параметры высокочастотного разряда.

Работа по изготовлению и изучению многоэлементных ламп продолжается.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

1. Баранов С.В., Баранова И.В., Иванов Н.П. - ЖПС, 1982, т.36, вып.3, с.357-369.
2. Naarsma J.P.S., de Jong G.J., Agterdenbos J. - Spectrochim. Acta, 1974, vol.29B, p.1-18.
3. Patent USA N 3.786.308; 1974; МК G03J 27/04; HO5B 41/24.
4. Бажов А.С., Жеребенко А.В. - ЖПС, 1976, т.24, вып.3, с.397 - 401.
5. Price W.J. Spectrochemical Analysis by Atomic Absorption. London, Heyden, 1979. 392 p.
6. А.с. 953679/СССР/. Способ изготовления высокочастотных безэлектродных ламп /ЛГУ им.П.Стучки; Авт.изобрет.Б.А. Силиньш, А.П.Убелис. - Заявл. 26.03.75 №3242637/18-21; Оpubл. в Откр., изобр., пром.обр., 1982, №31/ М.Кл.³ Н 01J 9/395.

Р. В. Орлов, А. Я. Риеба
ЛГУ им. П. Стучки
(Рига)

УСИЛИТЕЛЬ ДЛЯ ФОТОДИОДА

В измерениях относительно слабых потоков излучения (порядка 10^{-12} Вт) в качестве датчиков в настоящее время можно использовать фотодиоды. Применяя их вместо фотоэлектронных умножителей, можно обойтись без высоковольтного питания, что упрощает конструкцию измерителей излучения.

Однако, фотодиоды имеют большой температурный дрейф. Один из способов борьбы с ним — применение избирательных усилителей на частоте излучателя. Если частота излучения 50 Гц, возникают определенные трудности из-за сетевых наводок. Второй способ — компенсация дрейфа путем периодического приведения выхода усилителя к нулю при затемненном фотодиоде. Принципиальная схема усилителя, обеспечивающего компенсацию дрейфа, показана на рис. 1.

Усилитель имеет две ступени усиления. Первая ступень, построенная на операционном усилителе DA1, имеет коэффициент усиления по постоянному напряжению 100, а по переменному напряжению введена глубокая отрицательная обратная связь для предотвращения влияния импульсных наводок и наводок от сети 220 В. Первая ступень имеет большое входное сопротивление.

Коэффициент усиления второй ступени усилителя может быть изменен ступенчато в пределах от 3 до 100 подключением одного из четырех резисторов обратной связи R17-R20. Требуемый резистор подключается замыканием контактов одного из четырех реле К2-К5 при подаче на обмотку реле на-

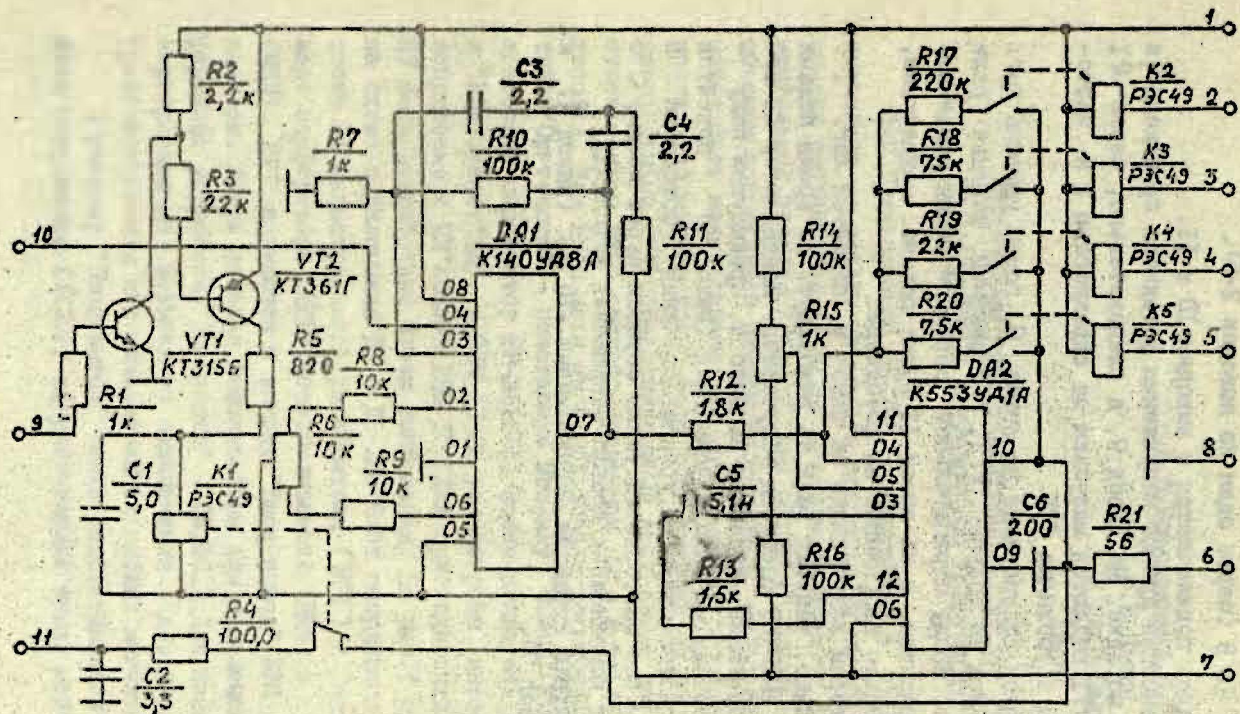


Рис. I. Принципиальная схема усилителя.

пряжения - 15 В (через один из выводов 2-5).

Фотодиод подключается к выводам IО и II.

Компенсация дрейфа напряжения фотодиода происходит в следующем порядке. На вывод 9, а следовательно, через R1 на базу VT1 подаются импульсы со скважностью 2 и частотой 0,5 Гц с уровнями ТТЛ.

В первом полупериоде на вывод 9 подан уровень лог. "0", фотодиод не облучен. VT1, VT2 закрыты, контакт реле KI замкнут. Ввиду отрицательной обратной связи конденсатор C2 зарядится, и на вывод II будет подано напряжение, компенсирующее напряжение на фотодиоде.

Во втором полупериоде на вывод 9 подается лог. "1". Следовательно, контакт реле KI разомкнут. Во время подачи лог. "1" на вывод 9 фотодиод облучается. Конденсатор C2 сохранит напряжение, поданное на него в предыдущем полупериоде, поэтому на выходе усилителя (вывод 6) появится уровень, соответствующий уровню облучения фотодиода. В дальнейшем все повторяется. Таким образом через каждые 2 с происходит компенсация дрейфа напряжения фотодиода.

Усилитель питается напряжениями +15 В (вывод I) и -15 В (вывод 7).

А. П. Брюховецкий, А. П. Круминьш,
Э. В. Липин
ЛГУ им. П. Стучки
(Рига)

СОПРЯЖЕНИЕ ЭВМ "ЭЛЕКТРОНИКА ДЗ-28" С
ПЕРИФЕРИЙНЫМИ УСТРОЙСТВАМИ "ОРГТЕКСТА"

ЭВМ "Электроника ДЗ-28", подключенная к эксперименту, позволяет не только проводить оперативную обработку полученных результатов /1,2/, но и автоматизировать сам экспериментальный процесс /3/, т.к. она обладает довольно большим объемом оперативной памяти, достаточным быстродействием и может быть использована как управляющее устройство. Возможности этой машины можно расширить, снабдив ее периферийными устройствами (ПУ), обеспечивающими ввод-вывод информации в отпечатанном либо отперфорированном виде, а также на экран дисплея. Для этой цели мы использовали периферийные устройства "Оргтекста" - печатающую машинку "CONSUL 260. I" (ПМ), ленточный перфоратор EP-35 (ПЛ), фотосчитыватель EP-40 (ФС) и "Видеотекст" (Д). В ЭВМ ДЗ-28 уже встроен интерфейс для сопряжения с ПМ "CONSUL 260. I". Для присоединения остальных ПУ были разработаны блоки сопряжения. На рис. 1 представлена схема подключения ПУ к ДЗ-28. Блок сопряжения (БС1) состоит из магистрального расширителя (МР1) и интерфейсных карт перфоратора (ИКП), фотосчитывателя (ИКФ) и дисплея (ИКД). МР1 подключен к выходу "Ввод-вывод" ЭВМ и имеет 8 каналов. Шесть каналов использованы для подключения периферийных устройств "Оргтекста" - ПЛ, ФС, Д. Два канала зарезервированы для возможного подключения двухкоординатного графопостроителя или накопителя на гибких магнитных дисках.

К разъему "Ввод-вывод" также подсоединяется второй блок сопряжения (БС2), обеспечивающий связь машины с экс-

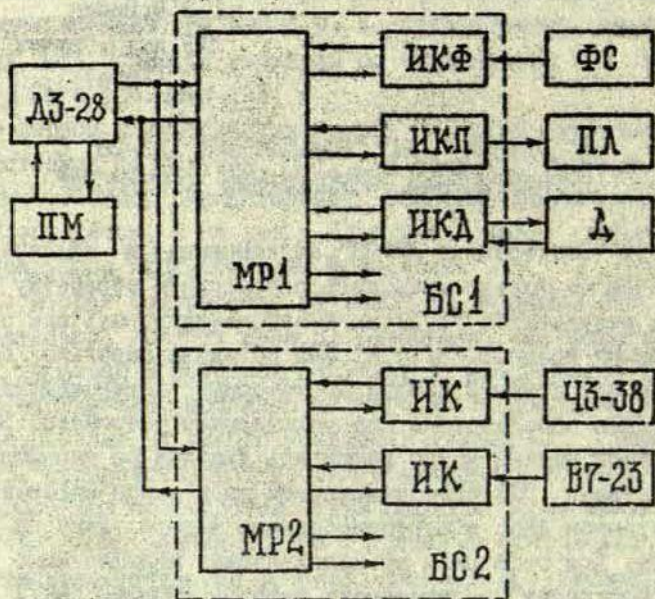


Рис. 1. Схема подключения периферийных устройств к ЭВМ "Электроника ДЗ-28".

периментальной установкой. Уже разработана магистральный расширитель (МР2) и комплект интерфейсных карт для сопряжения ЭВМ с приборами, имеющими цифровой выход в параллельно-последовательном коде и параллельном кодах 1-2-4-8 с положительными и отрицательными уровнями логических сигналов (ЧЗ-38, В7-16, В7-23).

Обмен информацией между ДЗ-28 и ПУ происходит по командам ввода-вывода /4/ при подаче вторым шагом кода адреса ПУ. В табл. I представлены коды, присвоенные периферийным устройствам "Оргтекста", а также скорость обмена ин-

Адреса периферийных устройств и скорость
обмена информации

ПУ	Адрес	Скорость обмена, байт/с
CONSUL260. I (ввод)	I3 00	до 5
(вывод)	I4 00	5 - 10
"Видеотекст" (ввод)	I5 01	80 - 100
(вывод)	I5 02	80 - 100
Перфоратор	I5 04	до 33
Фотосчитыватель	I2 02	до 40

формацией с ДЗ-28.

Функциональная схема интерфейсных карт ИКП, ИКФ и ИКД представлена на рис. 2. При подаче команды обмена код адреса ПУ по шине (X3, Y3) поступает на дешифратор адреса (ДШ), который вырабатывает выходной сигнал соответствующего адреса.

Выходной сигнал адреса I5 04 поступает на ключ К1 ИКП, который разрешает прохождение информации с шины вывода (X2, Y2) на кодовые электромагниты перфоратора. Формирователь команд управления ФП по приходу сигнала Вв от ЭВМ формирует команды "старта" и "протяжки" ленты в соответствии с циклом работы перфоратора. По заднему фронту сигнала готовности ПШ формируется периферийный синхроимпульс (СИП), подтверждающий готовность к приему следующего байта.

Выходной сигнал адреса I2 02 поступает на ИКФ. По приходу сигнала готовности ЭВМ Вв формирователь ФФС выдает команду "старт" на ФС и сигнал "транспортная дорожка", свидетельствующий о готовности передать байт информации в ЭВМ. Ключ К2 разрешает прохождение информации на шины ввода (Вва, Ввв). После этого формируется СИП, по которому ЭВМ принимает информацию.

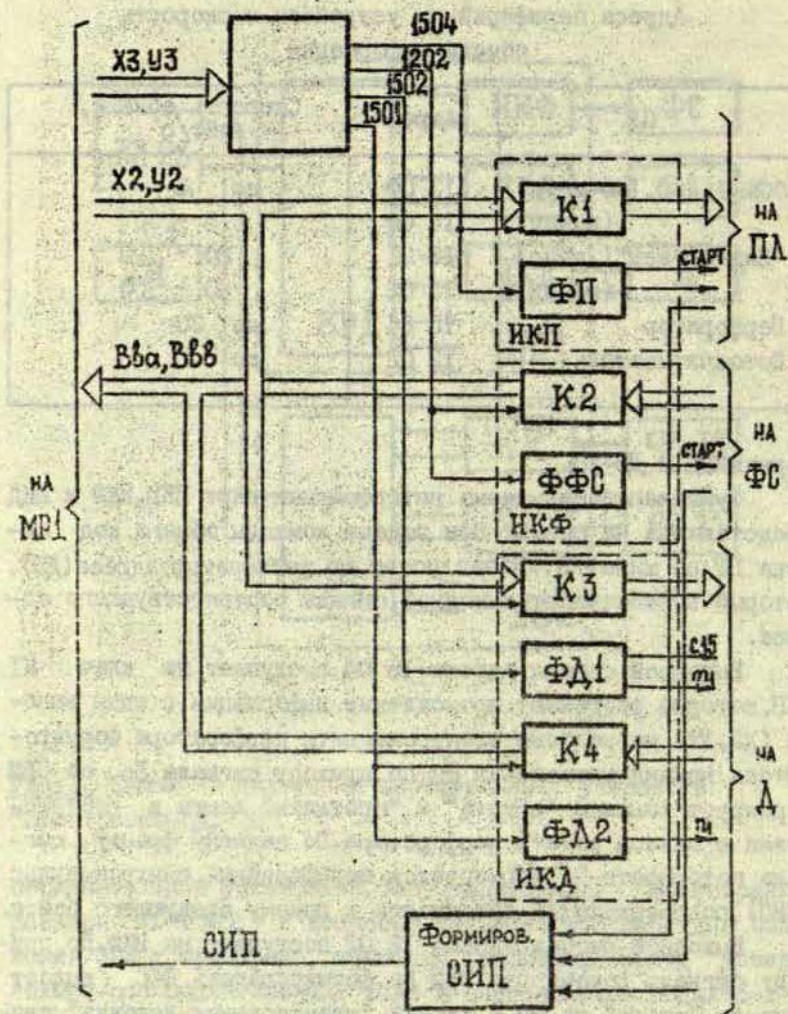


Рис. 2 Функциональная схема интерфейсных карт перфоратора фотосчитывателя и дисплея.

Сигнал адреса I5 02 поступает на ИЦД, и ключ К3 разрешает передачу информации на "Видеотекст". По приходу сигнала Вв формирователь ФД1 выдает на Д команду m I и синхронимпульс С15. "Видеотекст" принимает байт информации и выдает сигнал "ответ Д". После этого формируется СИП, подтверждающий готовность дисплея принять следующий байт информации.

Сигнал адреса I5 01 разрешает ввод информации в ЭВМ от дисплея. При поступлении сигнала Вв формирователь ФД2 выдает в "Видеотекст" команду h I, по которой Д выдает один байт информации и сигнал "ответ Д". Информация через ключ К4 поступает на шину ввода (Вва, Ввз), и следом формируется СИП. По приходу СИП ЭВМ готова к приему следующего байта.

Обмен информацией ЭВМ и "Видеотекстом" происходит в восьмиразрядном двоичном коде (ГОСТ I3052-74) с контролем на четность. Поскольку ЭВМ выдает информацию в семиразрядном коде, восьмой разряд в ИЦД формируется схемой дополнения до четности передаваемого байта.

Для работы "Видеотекста" на языке BASIC потребовалось произвести изменения в знакогенераторе дисплея. Часть постоянного запоминающего устройства (ПЗУ), генерирующая строчные буквы русского алфавита, цифры и специальные знаки, была заменена другим ПЗУ, генерирующим изображение прописных букв латинского алфавита, цифр и специальных знаков. Новое ПЗУ построено на микросхемах К155РЕЗ, а его программирование осуществлялось по методике, описанной в /5/.

Оснащение ЭВМ "Электроника ДЗ-28" ПУ расширило возможности машины. В настоящий момент она используется для научно-технических расчетов; составления, отладки и редактирования программ в кодах машины и на языке BASIC; подготовки перфолент для последующего ввода в ЭВМ типа М-6000, СМ или ЕС.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

1. Круминьш А. П., Скудра А. Я. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов/Под ред. Э. К. Краулинь. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1981, с. 174-177.
2. Машкина С. Н., Брюховецкий А. П., Котликов Е. Н. - Электронная техника, 1981, сер. 7, ТОПО, вып. 2 (105), с. 31-34.
3. Зимин Г. П., Фрадков А. И., Трещев С. А. - Приборы и системы управления, 1981, № II, с. 20-21.
4. Устройство специализированное управляющее вычислительное "Электроника ДЗ-28". Инструкция по эксплуатации, 1980. 107 с.
5. Технические условия ТУ II БКО. 348. 006 ТУ 18-76.

Я.К.Бусенбергс, О.Е.Вилитис
ФЭИ АН ЛатвССР
(Рига)

А.П.Круминьш, У.В.Янсон
ЛГУ им.П.Стучки
(Рига)

СОПРЯЖЕНИЕ ФЭУ С РЕГИСТРИРУЮЩИМ УСТРОЙСТВОМ ПРИ ИМПУЛЬСНЫХ СИГНАЛАХ

Амплитудный дискриминатор импульсов на интегральном компараторе К521СА2 /1/ имеет недостаточно высокую стабильность при изменении температуры и ограниченное быстродействие /2/, что ухудшает метрологические параметры счетчика фотонов $FS-3$. Цель настоящей работы — создать простой амплитудный дискриминатор с усовершенствованными параметрами, используя современные интегральные схемы.

Принципиальная схема такого амплитудного дискриминатора показана на рис.1. В дискриминаторе использован быстродействующий интегральный компаратор напряжения К521СА4. Среднее время переключения компаратора при небольших амплитудах дифференциального сигнала на его входе не превышает 15 нс /3/.

Входом дискриминатора является инвертирующий вход интегрального компаратора $DA1$. На его неинвертирующий вход подается постоянное напряжение, равное уровню дискриминации. Относительно большой коэффициент усиления по напряжению компаратора К521СА4 позволяет во многих случаях подключить вход дискриминатора непосредственно к нагрузочному резистору $R1$ анодной нагрузки ФЭУ.

С выхода компаратора импульс поступает к формировате-

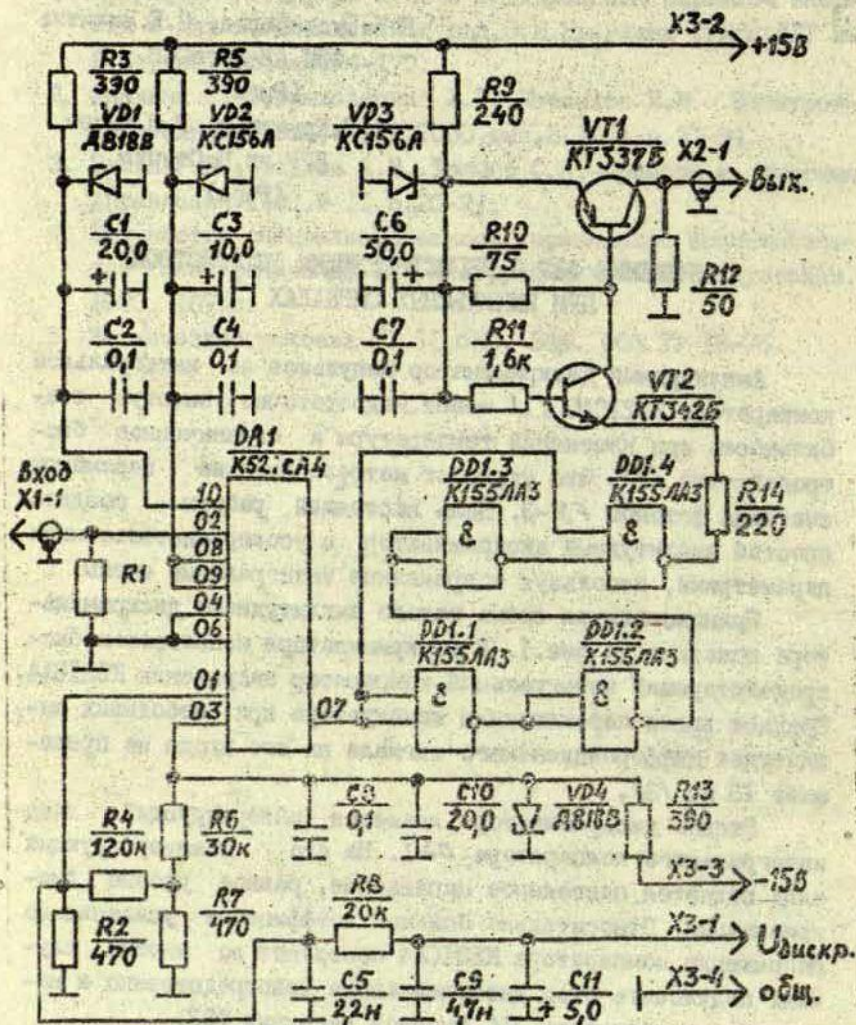


Рис. I Принципиальная схема амплитудного дискриминатора импульсов.

лю нормированных импульсов, соответствующих параметрам входных импульсов счетчика фотонов $FS-3$. В качестве время-задающего элемента использована микросхема DDI ; среднее время задержки переключения одного логического И-НЕ элемента этой схемы t_d (равное полусумме времен задержки включения и выключения) около 15 нс. При поступлении на управляющий вход элемента $DDI.1$ импульса в момент достижения напряжением уровня лог.1 элементы $DDI.1$ и $DDI.4$ изменяют первоначальные состояния и на выходе $DDI.4$ появляется лог.0. Элемент $DDI.3$ переключается через промежуток времени, равный $3t_d$, после чего на второй вход элемента $DDI.4$ поступает лог.0 и переключает его в первоначальное состояние. На выходе $DDI.4$ появляется лог.1, чем завершается формирование длительности импульса. На выходе элемента $DDI.4$ подключен двухкаскадный импульсный усилитель мощности на транзисторах $VT1$ и $VT2$. В исходном состоянии (когда на выходе $DDI.4$ уровень соответствует лог.1) оба транзистора закрыты. Выходное импульсное напряжение дискриминатора снимается с резистора $R_{12}=50$ Ом. Эмиттерный переход транзистора $VT2$ шунтируется небольшим сопротивлением резистора R_{10} , благодаря чему достигается быстрый спад заднего фронта выходного импульса.

Монтаж дискриминатора выполнен на листе двусторонне фольгированного стеклотекстолита, причем со стороны монтажа элементов фольга сохранена и подключена к общей массе. Компаратор и формирователь импульсов питаются от отдельных стабилизаторов напряжения, что вместе с указанным видом монтажа обеспечивает помехоустойчивость и стабильность работы дискриминатора.

Дискриминатор, построенный по описанной схеме, имеет следующие технические характеристики: ширина выходных прямоугольных импульсов 50 нс, их амплитуда соответствует уровням сигналов ТТЛ логических интегральных схем; разрешающая способность (наименьшее время между парными импульсами) 20 нс; наибольшее напряжение дискриминации ± 4 В; неопределенность уровня дискриминации менее 0,5 мВ.

Дискриминатор был испытан также совместно с широкополосным усилителем (полоса пропускания до 50 МГц, коэффициент усиления напряжения 40), включенным между выходом ФЭУ и входом дискриминатора. Усилитель был построен на двух последовательно включенных дифференциальных линейных усилителях повышенного быстродействия, входящих в состав интегральной схемы К500ЛП16. Использование такого усилителя позволяет снизить неопределенность уровня дискриминации относительно входа усилителя до 0,02 мВ. Подключение выхода дискриминатора к входу счетчика фотонов $FS-3$ осуществляется при помощи высокочастотного кабеля, имеющего волновое сопротивление 50 Ом; длина кабеля до нескольких десятков метров.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

1. Орлов Р.В., Янсон У.В. - Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и техн. наук, 1977, № 6, с. 8-14.
2. Счетчик фотонов $FS-3$. Техническое описание: Инструкция по эксплуатации. Рига, 1980. 49 с.
3. Егоров Г.И., Кобзарь С.И., Тулуевский В.М. и др. - Электрон. пром-сть, 1981, № 4, с. 21-23.

С о д е р ж а н и е

I. Фербер Р.С. Оптическая накачка и интерференция состояний в двухатомных молекулах	3
2. Аболтиньш А.Р., Фербер Р.С. Проявление эффекта резонанса биений основного состояния двухатомных молекул.....	28
3. Папернов С.М., Шведжда Ж.Л., Янсон М.Л. Механизмы заселения атомных и молекулярных состояний натрия при оптическом возбуждении уровней $Na(3^2P)$	40
4. Армане М.С., Клявиньш Я.П., Диепкаула М.А., Янсон М.Л. Молекулярно-атомные процессы переноса энергии при возбуждении паров щелочных металлов излучением Kr^+ лазера	59
5. Котликов Е.Н., Дмитриева И.В., Николаев А.Ю., Токарев В.И. Зависимость эффективных сечений столкновений от скорости сталкивающихся частиц в неоне	70
6. Алексахин И.С., Шафраньш И.И., Озолиньш Д.А., Самсон А.В. Возбуждение атомов натрия и бария электронным ударом из состояний $Na(3^2P_{3/2})$ и $Ba(5^1D_2)$	80
7. Загребин С.Б., Самсон А.В. Ионизационные столкновения в оптически возбужденных пучках атомов металлов	90
8. Пирагс И.Я., Харья Я.А., Шмит О.А. Определение сечений столкновительной релаксации основного состояния молекул NaK	97
9. Рупкус Я.Э., Краулина Э.К. Процессы образования метастабильных атомов и молекул при импульсном фотовозбуждении паров дибромиде свинца	102
10. Круглевский Б.А. Низколежащие термы $3 \Sigma_g^+$ молекулы K_2	116
II. Лукс И.Ю. Исследование многопараметровой регрессионной модели для анализа интерферограмм Фабри-Перо	125

12. Путьня С.Я. Обработка интерферограмм при исследовании контуров спектральных линий 132
13. Вдовин В.Г., Вдовина Н.А. Определение концентрации нормальных атомов по поглощению "черного" излучения в пределах резонансных линий оптически плотного неоднородного разряда 139
14. Агапов А.С., Смирнова Г.М., Хуторщиков В.И. Формирование линий излучения безэлектродных ламп в Е- и Н-разрядах 152
15. Берзиня Д.К., Скудра А.Я. Исследование оптических параметров высокочастотных безэлектродных ламп гелия 162
16. Силиньш Ю.А., Убелис А.П. Проблемы создания многоэлементных высокочастотных безэлектродных ламп 168
17. Орлов Р.В., Риеба А.Я. Усилитель для фотодиода... 172
18. Бржховецкий А.П., Круминьш А.П., Пипин Э.В. Сопряжение ЭВМ "Электроника ДЗ-28" с периферийными устройствами "Оргтекста" 175
19. Бусенберге Я.К., Вилитис О.Е., Круминьш А.П., Янсон У.В. Сопряжение ЭЭУ с регистрирующим устройством при импульсных сигналах 181

ПРОЦЕССЫ ПЕРЕНОСА ЭНЕРГИИ В ПАРАХ МЕТАЛЛОВ

Сборник научных трудов

Редакторы: Э.Крауля, Р.Довгополова
Технический редактор М.Лиенкаула
Корректор М.Лиенкаула

Подписано к печати 11.02.1983. ЯТ 09023 Ф/б 60x84/16.
Бум. №1. 12,5 физ. печ. л. 11,6 усл. печ. л. 9,2 уч.-изд. л.
Тираж 400 экз. Зак. № 378. Цена 1 р. 40 к.

Латвийский государственный университет им. П.Стучки
Рига 226098, б. Райниса, 19
Отпечатано в типографии, Рига 226050, ул. Вейденбаума, 5
Латвийский государственный университет им. П.Стучки

УДК 539.196

Фербер Р.С. Оптическая накачка и интерференция состояний в двухатомных молекулах: -В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 3-27.

С применением аппарата поляризационных моментов рассмотрена оптическая накачка димеров для случая очень больших значений угловых моментов. Проанализировано возникновение и разрушение поляризационных моментов основного и возбужденного состояния при стационарном и модулированном возбуждении и при наложении внешнего магнитного поля, а также вклад моментов различного ранга в лазерно-индуцированную флуоресценцию. Приведена сводка экспериментальных данных по измерению времен жизни, факторов Ланде, констант скорости и эффективных сечений столкновительной релаксации для отдельных колебательно-вращательных уровней N_2 , K_2 , $^{130}Te_2$, $^{80}Se_2$.

Табл. 4, ил. 6, библиогр. 34 назв.

УДК 539.196

Аболтыш А.Р., Фербер Р.С. Проявление эффекта резонанса биений основного состояния двухатомных молекул. -В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 28-39.

Описано явление резонанса квантовых биений основного электронного состояния димеров, возникающего при совпадении частот расщепления зеемановских подуровней с частотой гармонической модуляции возбуждающего излучения. В терминах поляризационных моментов рассмотрено влияние обратных спонтанных и вынужденных переходов, учтен магнетизм как нижнего, так и верхнего состояний, даны выражения для переходов как P , R , так и Q -типа.

Табл. 1, ил. 4, библиогр. 10 назв.

УДК 539.186.1

Папернов С.М., Шведжда Ж.Л., Янсон М.Л. Механизмы заселения атомных и молекулярных состояний натрия при оптическом возбуждении уровней $Na(3^2P)$. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 40-58.

Экспериментально изучены абсолютные эффективные сечения возбуждения высоких состояний атома натрия ($E=3,2 - 4,8$ эВ) при столкновении двух резонансно-возбужденных атомов 3^2P . Выяснен механизм возбуждения состояний V^1P_u и $3Y_g$ молекулы Na_2 . Получены эффективные сечения столкновительного возбуждения состояний V^1P_u и $A^1\Sigma_u^+$ димера натрия.

Табл. 1, ил. 5, библиогр. 20 назв.

УДК 539.196.2 ; 539.186.1

Армане М.С., Клявиныш Я.П., Лиепкаула М.А., Янсон М.Л. Молекулярно-атомные процессы переноса энергии при возбуждении паров щелочных металлов излучением Kr^+ -лазера. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 59-69.

Определены эффективные сечения переноса энергии возбуждения от димеров $Na_2(A^1\Sigma_u^+)$ и $K_2(V^1P_u)$ к соответствующим атомам при возбуждении димеров Kr^+ -лазером. С помощью перестраиваемого лазера на красителе получены зависимости эффективности переноса энергии от начального колебательно-вращательного состояния димера. Анализируется механизм димер-атомного переноса энергии.

Табл. 1, ил. 5, библиогр. 14 назв.

УДК 539.184

Котликов Е.Н., Дмитриева И.В., Николаев А.Ю., Токарев В.И. Зависимость эффективных сечений столкновений от скорости сталкивающихся час-

тиц в неоне. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 70-79.

В работе описывается оригинальное применение методов нелинейной лазерной спектроскопии и метода Ханле к исследованию зависимости эффективных сечений столкновений для уровня и линии перехода в неоне от скорости сталкивающихся частиц. Исследования такого рода позволяют определить тип взаимодействия частиц. Полученные экспериментальные результаты обсуждаются и интерпретируются.

Ил. 4, библиогр. 10 назв.

УДК 539.196 .2 ; 546.431

Алексахин И.С., Шафраньш И.И., Озолиньш Д.А., Самсон А.В. Возбуждение атомов натрия и бария электронным ударом из состояний $Na(3^2P_{3/2})$ и $Ba(5^1D_2)$. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 80-89.

Описана экспериментальная методика и изложены результаты измерений эффективных сечений и функций возбуждения электронным ударом атома бария из синглетного метастабильного состояния 5^1D_2 и атома натрия из рехонансно-возбужденного состояния $3^2P_{3/2}$. В экспериментах применена методика пересекающихся атомного и электронного пучков с использованием излучения перестраиваемого лазера на красителях.

Табл. 1, ил. 6, библиогр. 8 назв.

УДК 539.186 + 541.124.7:539.188

Загребин С.Б., Самсон А.В. Ионизационные столкновения в оптически возбужденных пучках атомов металлов. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 90-96.

Изложена методика исследования процессов ионизации при оптическом возбуждении пучка атомов металлов. Получены зависимости числа образующихся ионов от длины волны возбуждающего излучения для натрия, калия, рубидия и бария. Показано, что данная методика может быть успешно применена для исследования ионизационных процессов при атом-атомных столкновениях, фотоионизации атомов и молекул, изучения структуры и вероятности распада автоионизационных состояний.

Ил. 4, библиогр. 8 назв.

УДК 539.196

Пирагс И. Я., Харья Я. А., Шит О. А. Определение сечений столкновительной релаксации основного состояния молекул NaK. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 97-101.

Исследована зависимость скорости релаксации заселенности колебательно-вращательного уровня ($v' = 5$, $J' = 67$) основного состояния молекулы NaK от концентрации примесного газа Ar. Определено сечение релаксации указанного уровня молекулы NaK в соударениях с атомами инертного газа Ar.

Ил. ..., библиогр. 14 назв.

УДК 541.14

Рупкус Я. Э., Краулина Э. К. Процессы образования метастабильных атомов и молекул при импульсном фотовозбуждении паров дибромиды свинца. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 102-115.

В работе проводили исследования процессов импульсного фотоллиза в смеси паров дибромиды свинца и инертного газа. Установили, что метастабильные атомы свинца $Pb(^3P_{1,2})$,

$I D_2$) образуются в результате фотодиссоциации невозбужденных молекул $PbBr_2(^1A_1)$ и в результате взаимных столкновений электронно-колебательно возбужденных метастабильных молекул $PbBr_2(^3B_1)$. Рассмотрены пути образования метастабильных молекул $PbBr_2(^3B_1)$ при фотовозбуждении невозбужденных молекул $PbBr_2(^1A_1)$.

Ил. 8, библиогр. 16 назв.

УДК 539.186

Круглевский В. А. Низколежащие термы симметрии $^3\Sigma_g^+$ молекулы K_2 . - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 116-122.

Проведен расчет низколежащих термов $^3\Sigma_g^+$ димера калия методом Гайтлера-Лондона с учетом взаимодействия конфигураций и использованием потенциала Гельмана.

Табл. 2, ил. 1, библиогр. 7 назв.

УДК 543.42

Лукс И. Ю. Исследование многопараметровой регрессионной модели для анализа интерферограмм Фабри-Перо. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 123-131.

Численными методами исследована обусловленность задачи определения параметров контура Фойгта по Фурье-разложению интерферограммы Фабри-Перо. Обнаружена сильная корреляция между составляющими дисперсионного и гауссовского уширения. Исследованы факторы, влияющие на обусловленность задачи. Получено хорошее согласие с результатами теоретического анализа.

Табл. 1, ил. 2, библиогр. 7 назв.

УДК 543.42

Путиня С. Я. Обработка интерферограмм при исследовании контуров спектральных линий. — В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 132–138.

Аппроксимация истинного и аппаратного контуров функцией Фойгта позволила использовать аналитическое приближение функции Фойгта для определения параметров уширения спектральных линий свинца в высокочастотной безэлектродной лампе $Pb J_2$.

Табл. 1, ил. 3, библиогр. 13 назв.

УДК 621.387 + 537.33

Вдовин В. Г., Вдовина Н. А. Определение концентрации нормальных атомов по поглощению "черного" излучения в пределах резонансных линий оптически плотного неоднородного разряда. — В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 139–151.

Определены концентрации нормальных атомов N_0 по эквивалентной ширине полного поглощения в линиях со сложным видом контура в оптически тонком слое $P(\nu)$ в ртутном разряде высокого давления с добавками иодидов TlI , InI и NaI . Результаты сопоставлены с независимыми определениями по поглощению в молекулярных полосах иодидов, наблюдаемых при рекомбинации атомов в период распада плазмы, и по количеству иодидов в трубке, найденному с помощью химических анализов. С использованием N_0 проведены расчеты контуров излучения и поглощения резонансных линий, при этом $P(\nu)$ рассчитан в ударном и квазистатистическом приближениях теории уширения давлением (ртути) для потенциалов Ван-дер-Ваальса и Ленарда-Джонса с учетом сателлитной структуры крыльев линий. Теоретические результаты сравниваются с экспериментальными контурами.

Табл. 2, ил. 3, библиогр. 12 назв.

УДК 621.32, 535.33

Агапов А.С., Смирнова Г.М., Хуторщиков В.И. Формирование линий излучения безэлектродных спектральных ламп в Е- и Н-разрядах. - Р кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 152-161.

Рассмотрены факторы, определяющие формирование исходного профиля линий в высокочастотных безэлектродных спектральных лампах с парами рубидия. На основе ранее построенной системы уравнений, описывающей разряд в подобных лампах, исследована форма контура излучения в зависимости от режима разряда. Показано, что форма контура линий из разных областей лампы существенно различается, в результате чего регистрируемый в эксперименте контур должен зависеть от параметров оптической системы и от положения лампы по отношению к фокусу собирающей линзы.

Табл. 1, ил. 3, библиогр. 18 назв.

УДК 621.535.327

Верзиня Д.К., Скудра А.Я. Исследование оптических параметров высокочастотных безэлектродных ламп гелия. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 162-167.

Разработана технология изготовления гелиевых высокочастотных безэлектродных ламп и проведены предварительные измерения относительной интенсивности ряда спектральных линий и распределения интенсивности по радиусу лампы для линии $\lambda = 587,6$ нм.

Ил. 3, библиогр. 8 назв.

УДК 621.327

Силинщ Ю.А., Убелис А.П. Проблемы создания многоэлементных высокочастотных безэлектродных

ламп.—В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 168-171.

Обсуждаются трудности и сообщаются результаты изготовления многоэлементных высокочастотных безэлектродных ламп галогенидов тяжелых металлов.

Библиогр. 6 назв.

УДК 621.375

Орлов Р. В., Риеба А. Я. Усилитель для фотодиода.— В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 172-174.

Описан усилитель для фотодиода, используемый для измерения слабых импульсных излучений частотой 50 Гц. Компенсация температурного дрейфа фотодиода обеспечивается периодическим приведением выхода усилителя к нулю при затемненном фотодиоде.

Ил. 1.

УДК 535.853.22

Брюховецкий А. П., Круминьш А. П., Пипин Э. В. Сопряжение ЭВМ "Электроника ДЗ-28" с периферийными устройствами "Оргтекста".— В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 175-180.

В работе описывается комплекс, созданный на базе устройства "Электроника ДЗ-28" и периферийных устройств "Оргтекста". Помимо выполнения чисто вычислительных функций, комплекс может быть подключен к экспериментальной установке для сбора и обработки данных, а также управления экспериментом.

Табл. 1, ил. 2, библиогр. 5 назв.

УДК 621.374

Бусенберге Я.К., Вилитис О.Е., Круминьш А.П., Янсон У.В. Сопряжение ФЭУ с регистрирующим устройством при импульсных сигналах. - В кн.: Процессы переноса энергии в парах металлов. Рига: ЛГУ им. П. Стучки, 1983, с. 181-184.

Описана схема простого амплитудного дискриминатора импульсов на интегральном компараторе напряжения К521СА4. Разрешающая способность дискриминатора между парными импульсами 20 нс, неопределенность уровня дискриминации 0,5 мВ. Показаны способы сопряжения дискриминатора с ФЭУ.

Ил. 1, библиогр. 3 назв.