ПИСЬМА В РЕДАКЦИЮ

УДК 535.375.5

КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ СВЕТА, ИНДУЦИРОВАННОЕ РАДИАЦИОННЫМИ СТОЛКНОВЕНИЯМИ

Башаров А. М.

Стало традицией считать, что атомные столкновения являются одним из основных процессов, приводящих к релаксации оптической когерентности и потере фазовой памяти в газовых средах [1]. В последнее время интенсивно изучаются столкновения атомов, сопровождаемые излучением или поглощением фотона одновременно с изменением состояния обеих сталкивающихся частиц (радиационные столкновения [2]). До сих пор усилия исследователей здесь были ограничены анализом сечений передачи возбуждения в зависимости от дефекта резонанса и интенсивности оптического излучения. В данном сообщении показано, что передача возбуждения сопровождается также переносом оптической когерентности. Таким образом, в отличие от обычных фазосбивающих столкновений радиационные атомные столкновения, разрушая оптическую когерентность атомов одного сорта, приводят при определенных условиях к возбуждению когерентности атомов другого сорта. Это в свою очередь вызывает специфическое комбинационное рассеяние световых волн.

Рассмотрим импульсное разделенное во времени промежутком τ воздействие двух электромагнитных волн напряженности электрического поля

$$E = e \exp\left[i\left(\mathbf{kr} - \omega t\right)\right] + \text{к. с.}, \qquad 0 \leqslant t - \frac{\mathbf{kr}}{\omega} \leqslant T,$$

$$\mathscr{E} = \varepsilon \exp\left[i\left(\varkappa\mathbf{r} - \Omega t - \Phi\right)\right] + \text{к. с.}, \qquad T + \tau \leqslant t - \frac{\varkappa\mathbf{r}}{\Omega}$$

на газовую смесь атомов A и B, которая первоначально находилась либо в термодинамическом равновесии, либо была образована пересечением атомных пучков. В интервале времени $0 \leqslant t - \mathbf{kr}/\omega \leqslant T$ поле E, резонансно взаимодействуя с атомами B, индуцирует оптические переходы между уровнями с энергиями $E_1^{(B)}$ и $E_2^{(B)}$, $E_2^{(B)} - E_1^{(B)} = \hbar\omega$. В области $T + \tau \leqslant t - \varkappa\mathbf{r}/\Omega$ поглощение кванта поля $\mathscr{E}$ при столкновении возбужденного на уровень $E_2^{(B)}$ атома B с невозбужденным атомом A, заселяющим уровень $E_1^{(A)}$, приводит к передаче возбуждения от B к A: атом A переходит в состояние с энергией $E_2^{(A)} \approx E_1^{(A)} + E_2^{(B)} - E_1^{(B)} + \hbar\Omega$, тогда как атом B возвращается в невозбужденное состояние

$$\mathrm{B}^*(2) + \mathrm{A}(1) + \hbar\Omega \to \mathrm{B}(1) + \mathrm{A}^*(2). \tag{1}$$

Полагая, что плотность N_A атомов A много больше плотности N_B атомов B, будем учитывать фазосбивающие столкновения атомов A между собой, газокинетические атомные столкновения и радиационный распад посредством обычных релаксационных констант $\gamma^{(A)}$ и $\gamma^{(B)}$, тогда как радиационные столкновения (1) учтем более детально по методу [1, 3]. Для недиагональной по уровням $E_2^{(A)}$ и $E_1^{(A)}$ матрицы плотности $\rho_{21}^{(A)}(\mathbf{v})$ атомов A, движущихся со скоростью $\mathbf{v}$, получим уравнение

$$\left[\frac{\partial}{\partial t} + \mathbf{v}\nabla + i(\omega + \Omega) + \gamma^{(A)}\right]\rho_{21}^{(A)}(\mathbf{v}) = \exp\left[i\left(\varkappa\mathbf{r} - \Omega t - \Phi\right)\right] \times$$
$$\times N_\mathrm{A} f_\mathrm{A}(\mathbf{v}) \int d\mathbf{v}_0 d\mathbf{R}_\perp \left|\mathbf{v} - \mathbf{v}_0\right| a_2(\infty)\, \rho_{21}^{(B)}(\mathbf{v}_0), \tag{2}$$

которое и определяет перенос оптической когерентности от атомов В к А. Здесь $\rho_{21}^{(B)}(\mathbf{v}_0)$ — недиагональная по уровням $E_2^{(B)}$ и $E_1^{(B)}$ матрица плотности атомов В, движущихся со скоростью $\mathbf{v}_0$, — характеризует оптическую когерентность перехода $E_2^{(B)} \to E_1^{(B)}$; $d\mathbf{R}_\perp$ обозначает интегрирование по прицельному параметру $\mathbf{R}_\perp$, лежащему в плоскости, перпендикулярной $\mathbf{v}-\mathbf{v}_0$; $a_2(\infty)$ — амплитуда вероятности передачи возбуждения (1) (уравнение для a_2 приведено в [2]). Для простоты предположено, что дефект резонанса (с учетом штарковских сдвигов уровней) равен нулю.

Для оптически тонких сред находим следующее выражение для $\rho_{21}^{(A)}(\mathbf{v})$, описывающее оптическую когерентность перехода $E_2^{(A)} \to E_1^{(A)}$, индуцированную радиационными столкновениями (1):

$$\rho_{21}^{(A)}(\mathbf{v}) = N_A f_A(\mathbf{v})(R_1 + R_2)\exp\{i[(\varkappa + \mathbf{k})\mathbf{r} - (\omega + \Omega)t - \Phi]\},$$

$$R_1 = \int d\mathbf{v}_0 d\mathbf{R}_\perp F(\mathbf{v}, \mathbf{v}_0)\exp\left[-\left(i\mathbf{k}\mathbf{v}_0 + \Gamma_A + \gamma^{(B)}\right)(t - T - \tau - \varkappa\mathbf{r}/\Omega)\right],$$

$$R_2 = -\int d\mathbf{v}_0 d\mathbf{R}_\perp F(\mathbf{v}, \mathbf{v}_0)\exp\{-[i(\varkappa\mathbf{v} + \mathbf{k}\mathbf{v}) + \gamma^{(A)}](t - T - \tau - \varkappa\mathbf{r}/\Omega)\},$$

$$F(\mathbf{v}, \mathbf{v}_0) = |\mathbf{v} - \mathbf{v}_0|\, a_2(\infty) N_B f_B(\mathbf{v}_0)\Lambda d_{21}^{(B)}(2\theta |d_{21}^{(B)}|)^{-1}[i\sin\theta T + \mathbf{k}\mathbf{v}_0(1 - \cos\theta T)/\theta] \times$$
$$\times\left[\gamma^{(A)} - \gamma^{(B)} - \Gamma_A + i(\varkappa\mathbf{v} + \mathbf{k}\mathbf{v} - \mathbf{k}\mathbf{v}_0)\right]^{-1}\exp[i\mathbf{k}\mathbf{v}_0(\mathbf{k}\mathbf{r}/\omega - \varkappa\mathbf{r}/\Omega - \tau)],$$

$$\Gamma_A = N_A\int d\mathbf{v}\, d\mathbf{R}_\perp |\mathbf{v} - \mathbf{v}_0|(1 - a_1(\infty)) f_A(\mathbf{v}), \quad \Gamma_B = N_B\int d\mathbf{v}_0 d\mathbf{R}_\perp |\mathbf{v} - \mathbf{v}_0|\, a_2(\infty) f_B(\mathbf{v}_0),$$

$$\theta = [(\mathbf{k}\mathbf{v}_0)^2 + \Lambda^2]^{1/2}, \quad \Lambda = 2e|d_{21}^{(B)}|\hbar^{-1}, \quad T\gamma^{(B)} \ll 1, \quad \tau\gamma^{(B)} \ll 1,$$

где $a_1(\infty)$ — амплитуда вероятности столкновения $B^*(2)$ с $A(1)$ в поле $\mathscr{E}$ без передачи возбуждения, $d_{21}^{(B)}$ — дипольный момент перехода $E_2^{(B)} \to E_1^{(B)}$, $f_{A,B}(\mathbf{v})$ дают стационарные распределения атомов А и В по скоростям в отсутствие внешних полей, которые в одном случае суть распределения Максвелла с наиболее вероятными скоростями u_A и u_B. В случае атомных пучков $f_{A,B}(\mathbf{v})$ сосредоточены в узкой области с размерами порядка $\tilde{u}_A$ и $\tilde{u}_B$ вблизи средних скоростей $\mathbf{v}_A$ и $\mathbf{v}_B$ в пучках.

Поскольку оптическая когерентность двухквантового перехода $E_2^{(A)} \to E_1^{(A)}$ отлична от нуля, то пробная световая волна

$$E_0 = e_0\exp[i(\mathbf{k}_0\mathbf{r} - \omega_0 t - \varphi)] + \text{к. с.}$$

испытывает комбинационное рассеяние (КР), причем напряженности $E_\pm$ электрического поля антистоксового (верхний знак) и стоксового сигналов имеют вид

$$E_\pm = e_\pm\exp\{\pm i[(\mathbf{k}_0 \pm (\mathbf{k} + \varkappa))\mathbf{r} - (\omega_0 \pm (\omega + \Omega)) - (\varphi \pm \Phi)]\} + \text{к. с.}, \tag{3}$$

$$e_\pm = \pm i2\pi|\mathbf{k}_0 \pm (\mathbf{k} + \varkappa)|\, L e_0 \Pi^*_{\mp\omega_0} N_A\int (R_1 + R_2) f_A(\mathbf{v})\, d\mathbf{v},$$

$$\Pi_\sigma = \sum_m d_{2m}^{(A)} d_{m1}^{(A)}[(E_m^{(A)} - E_2^{(A)} + \hbar\sigma)^{-1} + (E_m^{(A)} - E_1^{(A)} - \hbar\sigma)^{-1}].$$

Здесь $d_{nm}^{(A)}$ — дипольный момент оптически разрешенного перехода атома А $E_n^{(A)} \to E_m^{(A)}$ с рассматриваемых уровней $n = 1, 2$ на промежуточной энергии $E_m^{(A)}$, L — протяженность области взаимодействия газовой смеси с полями E, $\mathscr{E}$ и E_0. Требование $\omega_0 \pm (\omega + \Omega) = |\mathbf{k}_0 \pm (\mathbf{k} + \varkappa)|c$ определяет условия пространственного синхронизма КР волны E_0.

Наибольший перенос оптической когерентности радиационными столкновениями (1) и, как следствие, максимальная величина интенсивности КР пробной волны достигаются при использовании хорошо коллимированных атомных пучков с параметрами $k\tilde{u}_B < \Gamma_A + \gamma^{(B)}$, $|\varkappa + \mathbf{k}|\tilde{u}_A < \gamma^{(A)}$, $\mathbf{k}\mathbf{v}_B = (\mathbf{k} + \varkappa)\mathbf{v}_A = 0$. Тогда интенсивность сигнала (3) КР зависит от релаксационных характеристик и времени $t' = t - T - \tau - \varkappa\mathbf{r}/\Omega$ с учетом запаздывания как

$$\left\{\frac{\Gamma_B}{\gamma^{(A)} - \gamma^{(B)} - \Gamma_A}\left[e^{-(\Gamma_A + \gamma^{(B)})t'} - e^{-\gamma^{(A)}t'}\right]\right\}^2,$$

что позволяет на практике использовать (3) для исследования радиационных столкновений (1).

Отметим, что основным препятствием для наблюдения переноса (2) оптической когерентности в рассмотренном случае импульсного воздействия полей бегущих волн E и $\mathscr{E}$ служит допплеровская дефазировка атомов B. Ее можно устранить не прибегая к помощи атомных пучков, если использовать вместо E пару импульсов стоячих волн частоты ω. Это будет изучено в дальнейшем.

В заключение подчеркнем отличие обсуждаемых процессов, связанных с передачей возбуждения радиационными столкновениями (1), от столкновений возбужденных и невозбужденных атомов одного сорта [3]. В последнем случае также возможна передача возбуждения, однако сами акты передачи возбуждения в разных столкновениях никак не связаны друг с другом, поэтому фазовая память разрушается и перенос когерентности отсутствует даже при использовании атомных пучков. Между тем элементарные акты (1) скоррелированы когерентным электромагнитным полем $\mathscr{E}$, поглощение кванта которого и вызывает передачу возбуждения, сопровождаемую переносом когерентности (2).

Литература

[1] Вайнштейн Л. А., Собельман И. И., Юков Е. А. Возбуждение атомов и уширение спектральных линий. М., 1979. 319 с.
[2] Гудзенко Л. И., Яковленко С. И. — ЖЭТФ, 1972, т. 62, № 5, с. 1686—1694.
[3] Казанцев А. П. — ЖЭТФ, 1966, т. 51, № 6, с. 1751—1760.

Поступило в Редакцию 19 апреля 1985 г.

УДК 539.194.01

Опт. и спектр., т. 59, в. 4, 1985

АКТИВИЗАЦИЯ ВРАЩАТЕЛЬНЫХ ПЕРЕХОДОВ СИММЕТРИЧНЫХ МОЛЕКУЛ ЯДЕРНЫМИ СВЕРХТОНКИМИ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯМИ

Алиев М. Р.

Считается, что вращательные переходы могут происходить только между уровнями с одинаковым значением ядерного спина [1], так как электрический дипольный момент молекулы не зависит от ядерных спинов. Например, в молекулах с симметрией C_{3v} из-за этого ограничения возможны только переходы с проекцией k вращательного углового момента $\Delta k=0$, ± 3, ± 6 ($A_1 \leftrightarrow A_2$, $E \leftrightarrow E$), из которых только переходы с $\Delta k=0$ разрешены в случае жесткого волчка [2]. При наличии в молекуле одиночного ядра с большим квадрупольным взаимодействием могут разрешаться переходы с $\Delta J=\pm 2$ и ± 3, однако запрет по Δk сохраняется. В настоящем сообщении показано, что в молекулах, содержащих тождественные ядра, особенно ядра со спином $\geqslant 1$, анизотропная часть ядерных сверхтонких взаимодействий, не рассмотренная ранее, может снять запрет и с переходов $\Delta k=\pm 1$, ± 2, причем интенсивности таких переходов при выполнении определенных условий могут быть сравнимы с интенсивностью разрешенных переходов.

В общем случае произвольной молекулы и при учете всевозможных сверхтонких взаимодействий задача становится громоздкой, поэтому рассмотрим частный случай молекулы типа XY_3 с I_X, $I_Y \geqslant 1$, т. е. будем считать, что имеет место квадрупольное взаимодействие обоих типов ядер с электрическим полем молекулы. Гамильтониан квадрупольного взаимодействия с учетом перестановочной симметрии ядер Y можно записать в виде

$$H_Q = \frac{1}{2} V_2^{A_1}(X) : Q_2^{A_1}(X) + \frac{1}{2} \sum_{\gamma=A_1, E} V_2^{\gamma}(Y) : Q_2^{\gamma}(Y), \qquad (1)$$