УДК 539.186.3

НЕЛИНЕЙНЫЕ РЕЗОНАНСЫ, ИНДУЦИРОВАННЫЕ ДЕЗОРИЕНТИРУЮЩИМИ СТОЛКНОВЕНИЯМИ

С. Г. Раутиан и *А. М. Шалагин*

Предложен поляризационный метод нелинейной спектроскопии, с помощью которого регистрируются нелинейные резонансы, индуцированные дезориентирующими столкновениями. Форма резонансов тесно связана с дифференциальным сечением дезориентирующих столкновений. Исследование таких резонансов способно дать информацию о поведении потенциала взаимодействия сталкивающихся частиц на близких расстояниях (меньше радиуса Вайскопфа).

1. Введение

Как известно, монохроматическое поле создает неравновесность в распределении атомов по скоростям на комбинирующих уровнях (провалы и пики Беннета). Эта неравновесность испытывает уширение вследствие различного типа процессов, протекающих при столкновениях: сбоя фазы атомного осциллятора, неупругих процессов, дезориентации, изменения

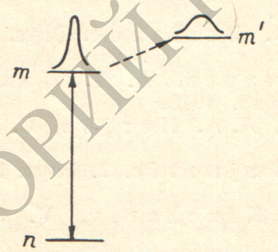

Рис. 1. Перенос неравновесности при неупругих столкновениях.

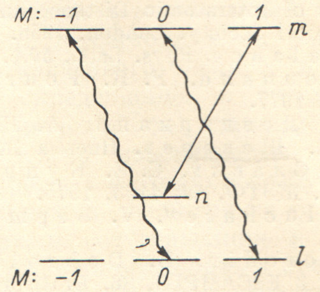

Рис. 2. Схема наблюдения нелинейных резонансов, индуцированных дезориентирующими столкновениями.

скорости. Среди перечисленных процессов особое место занимает изменение скорости при столкновениях: распределение по скоростям, помимо провалов Беннета, приобретает дополнительные неравновесности, индуцированные столкновениями с изменением скорости (так называемые столкновительные пики и провалы [1, 2]), и их форма тесно связана с дифференциальными сечениями рассеяния.

Очевидно, что наблюдение столкновительных пиков и провалов в методическом отношении проще всего осуществить тогда, когда они индуцированы столкновениями с переносом неравновесности на уровни, не возмущенные сильным полем (рис. 1), что характерно, например, для неупругих процессов. В данном случае неравновесность на уровне m' не маскирована «обычным» провалом Беннета. Исследуя ее методами нелинейной

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ имени Ф. Скорины

спектроскопии, можно получить информацию о дифференциальном сечении соответствующего процесса. Впервые подобная информация получена по отношению к неупругому рассеянию атома на электроне [3]. Нелинейные резонансы, индуцированные неупругими столкновениями, исследовались также в [4–7].

Перенос неравновесности на уровни, не возмущенные полем, может происходить и в системе подуровней вырожденных атомных состояний. В этом случае в качестве уровней m, m' выступают магнитные подуровни M, M', а перенос неравновесности осуществляется дезориентирующими столкновениями.

Простейший вариант регистрации нелинейных резонансов, индуцированных дезориентирующими столкновениями, иллюстрируется рис. 2. Сильное поле круговой поляризации, резонансное переходу между уровнями m, n с угловыми моментами $J_m=1$, $J_n=0$, создает неравновесность на подуровне $M=1$ уровня m. Пробное поле, резонансное переходу $m-l$ $(J_l=1)$, имеет ортогональную круговую поляризацию. Очевидно, что нелинейный резонанс в спектре поглощения пробного поля появится только при наличии дезориентирующих столкновений, а его ширина и форма изменены в соответствии с дифференциальным сечением дезориентирующих столкновений.

Возможность исследования процессов дезориентации в разобранной простейшей схеме впервые отмечена в работе [8], где речь шла, однако, только о полных сечениях дезориентации. Легко убедиться, что если максимальное из значений J_m, J_n, J_l превышает единицу, то при любых поляризациях сильного и пробного полей в спектр поглощения пробного поля вносят вклад и подуровни, возмущенные сильным полем. Однако, как показано ниже, методы нелинейной поляризационной спектроскопии позволяют избавиться от этого вклада и при любых угловых моментах комбинирующих уровней выделить ту часть нелинейного резонанса, которая обусловлена сугубо дезориентирующими столкновениями. В результате появляется возможность исследовать полные и дифференциальные сечения столкновений с изменением магнитного квантового числа для уровней с произвольным значением углового момента. В этом состоит основной методический результат настоящей работы.

2. Трехуровневая система

В общем случае уравнения для матрицы плотности в представлении поляризационных моментов имеют следующий вид [9]:

$$\left(\frac{\partial}{\partial t}+\mathrm{v}\nabla+\Gamma_{kj}+i\omega_{kj}\right)\rho_{kj}(\varkappa q\mathrm{v})=Q_j\delta_{kj}\delta_{\varkappa 0}\delta_{q0}W(\mathrm{v})+S_{kj}(\varkappa q\mathrm{v})+$$
$$+i\sum_{l\varkappa_1 q_1}\left[\rho_{kl}(\varkappa_1 q_1\mathrm{v})\,U^{k*}_{jl}(\varkappa_1 q_1\mid\varkappa q)-(-1)^{J_j-J_k+q}\rho^{*}_{jl}(\varkappa_1 q_1\mathrm{v})\,U^{j}_{kl}(\varkappa_1 q_1\mid\varkappa-q)\right]. \quad (2.1)$$

$$S_{kj}(\varkappa q\mathrm{v})=-\sum_{\varkappa_1 q_1}\left[\nu_{kj}(\varkappa q\mid\varkappa_1 q_1)\,\rho_{kj}(\varkappa_1 q_1\mathrm{v})-\int A_{kj}(\varkappa q\mathrm{v}\mid\varkappa_1 q_1\mathrm{v}_1)\,\rho_{kj}(\varkappa_1 q_1\mathrm{v}_1)\,d\mathrm{v}_1\right]. \quad (2.2)$$

$$U^{k}_{jl}(\varkappa q\mid\varkappa_1 q_1)=\sum_{\lambda\sigma}(-1)^{\varkappa-J_k-J_l}\sqrt{(2\varkappa+1)(2\varkappa_1+1)}\times$$
$$\times\begin{Bmatrix}\lambda & \varkappa & \varkappa_1\\ J_k & J_j & J_l\end{Bmatrix}(-1)^{\varkappa_1-q_1}\langle\varkappa q\varkappa_1-q_1\mid\lambda\sigma\rangle\,V_{jl}(\lambda\sigma). \quad (2.3)$$

Индексы k, j, l нумеруют энергетические состояния атома; Γ_{kj}, ω_{kj} — константы радиационной релаксации и частоты переходов $k-j$. Член, пропорциональный Q_j, в уравнениях (2.1) описывает возбуждение уровней атома, которое, как обычно, полагаем максвелловским по скоростям [множитель $W(\mathrm{v})$], некогерентным и изотропным (символы Кронеккера δ_{kj}, $\delta_{\varkappa 0}$, δ_{q0}). Интеграл столкновений (2.2) описывает упругие столкновения с изменением скорости и дезориентацией. Последний член в правой части уравнений (2.1) ответствен за взаимодействие атома с внешним полем.

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ ИМЕНИ Ф. СКОРИНЫ

Величины $V_{jl}(\lambda\sigma)$, входящие в выражение (2. 2), имеют смысл коэффициентов разложения оператора взаимодействия с полем по неприводимым тензорным операторам. Для поляризационных моментов $\rho_{kj}(\varkappa q v)$ матрицы плотности и величин $V_{jl}(\lambda\sigma)$ справедлива следующая связь с M-представлением:

$$\left.\begin{aligned} \rho_{kj}(\varkappa q \mathbf{v}) &= \sum_{MM'} (-1)^{J_j - M'} \langle J_k M J_j - M' \mid \varkappa q\rangle \rho(J_k M \mid J_j M';\ \mathbf{v}), \\ V_{jl}(\lambda\sigma) &= \sum_{MM'} (-1)^{J_l - M'} \langle J_j M J_l - M' \mid \lambda\sigma\rangle V(J_j M \mid J_l M'). \end{aligned}\right\} \quad (2.4)$$

Для дипольного взаимодействия $V_{jl}(\lambda\sigma) = V_{jl}(1\sigma)\,\delta_{\lambda 1}$.

Рассмотрим задачу о поглощении пробного излучения, резонансного переходу $m-l$, при условии, что атомы находятся во взаимодействии с сильным полем, резонансным смежному переходу $m-n$ (трехуровневая система, ω_{mn}, $\omega_{ml} > 0$). Отличные от нуля матричные элементы взаимодействия имеют вид

$$\left.\begin{aligned} V_{mn}(1\sigma) = G_\sigma \exp[-i(\omega t - \mathbf{kr})],\ V_{ml}(1\sigma) = G_\sigma^\mu \exp[-i(\omega_\mu t - \mathbf{k}_\mu \mathbf{r})] \\ G_\sigma = E_\sigma d_{mn}/2\hbar,\ G_\sigma^\mu = E_\sigma^\mu d_{ml}/2\hbar, \end{aligned}\right\} \quad (2.5)$$

где E_σ, E_σ^μ — круговые компоненты электрических векторов сильного и пробного полей; ω, ω_μ, $\mathbf{k}$, $\mathbf{k}_\mu$ — частоты и волновые векторы, d_{ij} — матричные элементы дипольного момента. Будем считать справедливой модель изотропного столкновительного возмущения, в которой интеграл столкновений принимает вид [2]

$$S_{lj}(\varkappa q\mathbf{v}) = -\nu_{lj}\rho_{lj}(\varkappa q\mathbf{v}) + \int A_{lj}^{(\varkappa)}(\mathbf{v} \mid \mathbf{v}_1)\,\rho_{lj}(\varkappa q \mathbf{v}_1)\,d\mathbf{v}_1, \quad (2.6)$$

где частоты ухода ν_{lj} и ядра A_{lj} диагональны по $\varkappa$, q и не зависят от q. Частоты ухода, кроме того, не зависят и от $\varkappa$.

В условиях большого допплеровского уширения ($\Gamma_{mn} + \nu_{mn}$, $\Gamma_{ml} + \nu_{ml} \ll k\bar{v}$) вычислим работу P_μ пробного поля, распространяющегося навстречу сильному, с точностью до первых нелинейных поправок. Выражение для P_μ в этом случае можно представить в виде

$$P_\mu = 2\hbar\omega_\mu \operatorname{Re}\{(N_m - N_l)\,|G^\mu|^2\,\alpha(\Omega_\mu) - (N_m - N_n)\,\varphi(\Omega_\mu)\}, \quad (2.7)$$
$$\Omega_\mu = \omega_\mu - \omega_{ml},$$

где N_j — заселенность уровня j в отсутствие сильного поля. Функция $\alpha(\Omega_\mu)$ описывает контур линейного поглощения пробного поля. Влияние сильного поля сосредоточено во втором члене (2. 7). Зависимость $\varphi(\Omega_\mu)$ от частоты пробного поля описывает нелинейный резонанс.

Стандартные процедуры вычислений в модели столкновений (2. 6) [9] [1] приводят к следующим выражениям для $\alpha(\Omega_\mu)$ и для $\varphi(\Omega_\mu)$ при линейной ($\uparrow$) и круговой ($\bigcirc$) поляризациях сильного поля

$$\alpha(\Omega_\mu) = \langle F_{ml}(\mathbf{v} \mid \mathbf{v}_1)\,W(\mathbf{v}_1)\rangle, \quad (2.8)$$

$$\varphi_\uparrow(\Omega_\mu) = \frac{1}{3}\,|G_\uparrow G^\mu|^2\,[a_0 b_0 + a_2(3\xi_\uparrow - 1)\,b_2], \quad (2.9)$$

$$\varphi_\bigcirc(\Omega_\mu) = \frac{1}{3}\,|G_\bigcirc G^\mu|^2\left[a_0 b_0 + 3a_1(\xi_\bigcirc - 1)\,b_1 + \frac{1}{2}\,a_2 b_2\right], \quad (2.10)$$

$$a_\varkappa = (-1)^{J_n - J_l}\,9\begin{Bmatrix} 1 & 1 & \varkappa \\ J_m & J_m & J_n \end{Bmatrix}\begin{Bmatrix} 1 & 1 & \varkappa \\ J_m & J_m & J_l \end{Bmatrix},\quad \xi_\uparrow = \left|\frac{G_\parallel^\mu}{G^\mu}\right|^2,\quad \xi_\bigcirc = \left|\frac{G_+^\mu}{G^\mu}\right|^2. \quad (2.11)$$

Здесь $G_\parallel^\mu$, G_+^μ имеют смысл амплитуд нормальных компонент пробного поля, поляризованных так же, как и сильное; $|G^\mu|^2$ — полная интенсивность пробного поля. Значения $\xi_\uparrow$, $\xi_\bigcirc$ могут, таким образом, варьироваться в преде-

---

[1] Следует учесть, что в формуле (5. 5) работы [9] допущена описка: вместо множителя $1 + \delta_{0\alpha}$ перед величиной B (2) должен стоять множитель $3\delta_{0\alpha} - 1$.

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ имени Ф. Скорины

лах от нуля (ортогональные поляризации сильного и пробного полей) до единицы (одинаковые поляризации). Зависимость от частоты пробного поля в (2. 9), (2. 10) сосредоточена в поляризационных коэффициентах $b_{\varkappa}$, которые выражаются через функции Грина F_{mn}, F_{ml}, $F_{mm}^{(\varkappa)}$ уравнений для дипольных моментов, наведенных на переходах $m-n$, $m-l$, и поляризационных моментов (ранга $\varkappa$) уровня m

$$b_{\varkappa}(\Omega_{\mu}) = \langle F_{ml}(\mathbf{v} \mid \mathbf{v}_1) F_{mm}^{(\varkappa)}(\mathbf{v}_1 \mid \mathbf{v}_2) [F_{mn}(\mathbf{v}_2 \mid \mathbf{v}_3) + F_{mn}^{*}(\mathbf{v}_2 \mid \mathbf{v}_3)] W(\mathbf{v}_3)\rangle. \tag{2. 12}$$

Угловыми скобками в (2. 12) и (2. 8) обозначено интегрирование по всем скоростям v, v_i. Функции Грина, в свою очередь, подчиняются следующим уравнениям:

$$[\Gamma_{ij} + \nu_{ij} - i\Omega_{ij}(\mathbf{v})] F_{ij}^{(\varkappa)}(\mathbf{v} \mid \mathbf{v}') = \int A_{ij}^{(\varkappa)}(\mathbf{v} \mid \mathbf{v}_1) F_{ij}^{(\varkappa)}(\mathbf{v}_1 \mid \mathbf{v}')\, d\mathbf{v}_1 + \delta(\mathbf{v} - \mathbf{v}_1),\ \Omega_{jj}(\mathbf{v}) = 0,$$

$$\Omega_{mn}(\mathbf{v}) = \Omega - \mathbf{k}\mathbf{v},\ \Omega_{ml}(v) = \Omega_{\mu} - \mathbf{k}_{\mu}\mathbf{v},\ \Omega = \omega - \omega_{mn},\ F_{ij}^{(1)}(\mathbf{v} \mid \mathbf{v}') \equiv F_{ij}(\mathbf{v} \mid \mathbf{v}'). \tag{2. 13}$$

Зависимость поляризационных коэффициентов $b_{\varkappa}$ от $\varkappa$ обусловлена зависимостью от $\varkappa$ функции Грина $F_{mm}^{(\varkappa)}$ или, как это следует из (2. 13), зависимостью от $\varkappa$ ядра $A_{mm}^{(\varkappa)}$. Если $A_{mm}^{(\varkappa)}$ одинаковы при всех значениях $\varkappa$

$$A_{mm}^{(0)} = A_{mm}^{(1)} = A_{mm}^{(2)} = \ldots \equiv A_{mm}, \tag{2. 14}$$

дезориентация при столкновениях отсутствует. Действительно, в M-представлении

$$A_{mm}(MM'\mathbf{v} \mid M_1M_1'\mathbf{v}_1) = \sum_{\varkappa q} (-1)^{2J_m - M' - M_1'} \langle J_m M J_m - M' \mid \varkappa q\rangle \times$$

$$\times \langle J_m M_1 J_m - M_1' \mid \varkappa q\rangle A_{mm}^{(\varkappa)}(\mathbf{v} \mid \mathbf{v}_1). \tag{2. 15}$$

При выполнении равенств (2. 14) из этого соотношения следует

$$A_{mm}(MM'\mathbf{v} \mid M_1M_1'\mathbf{v}_1) = \delta_{MM_1}\delta_{M'M_1'} A_{mm}(\mathbf{v} \mid \mathbf{v}_1), \tag{2. 16}$$

т. е. проекции момента при столкновении не меняются. И наоборот, дезориентация существенна в меру нарушения равенств (2. 14).

Таким образом, дезориентация приводит к тому, что поляризационные коэффициенты $b_{\varkappa}$ становятся зависящими от $\varkappa$. Другими словами, нелинейные резонансы, индуцированные дезориентирующими столкновениями, должны описываться разностями типа $b_{\varkappa} - b_{\varkappa'}$.

Рассмотрим возможность регистрации нелинейных резонансов, обусловленных только разностями $b_{\varkappa} - b_{\varkappa'}$. Начнем с простейших случаев. Предположим, что выполняется одно из условий

$$a_0 + a_2(3\xi_{\uparrow} - 1) = 0, \tag{2. 17}$$

или

$$a_0 + 3a_1\left(\xi_{\bigcirc} - \frac{1}{2}\right) + \frac{1}{2}a_2 = 0. \tag{2. 18}$$

В первом случае из (2. 9) следует

$$\varphi_{\uparrow}(\Omega_{\mu}) = \frac{1}{3} \mid G_{\uparrow}G^{\mu} \mid^2 a_0(b_0 - b_2), \tag{2. 19}$$

а во втором случае выражение (2. 10) сводится к следующему:

$$\varphi_{\bigcirc}(\Omega_{\mu}) = \frac{1}{3} \mid G_{\bigcirc}G^{\mu} \mid^2 \left[a_0(b_0 - b_1) + \frac{1}{2}a_2(b_2 - b_1)\right]. \tag{2. 20}$$

Отметим, однако, что условия (2. 17), (2. 18) могут быть выполнены только для переходов с малыми значениями угловых моментов. А именно равенство (2. 17) справедливо только для значений $J_m = J_l = 1$, $J_n = 0$ и при $\xi_{\uparrow} = 1$. Равенство (2. 18) удовлетворяется только при $\xi_{\bigcirc} = 0$ и следующих значениях моментов: $J_m = J_n = J_l = {}^1/_2$; $J_m = 1$, $J_n = J_l = 0$; $J_m = {}^3/_2$, $J_n = J_l = {}^1/_2$; $J_m = J_n = 1$, $J_l = 0$; $J_m = J_l = 1$, $J_n = 0$. Один из перечисленных случаев ($J_m = J_l = 1$, $J_n = 0$; $\xi_{\bigcirc} = 0$) отвечает рис. 2 и уже обсуждался выше. Остальные имеют, очевидно, столь же простую интерпретацию.

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ ИМЕНИ Ф. СКОРИНЫ

4. Заключение

Столкновения, при которых происходит дезориентация, обязательно сопровождаются изменением скорости атома, по крайней мере на величину, обусловленную дифракцией. Однако даже дифракционное изменение скорости в некоторых случаях (колебательно-вращательные переходы молекул, переходы между метастабильными состояниями атомов) может приводить к существенному уширению нелинейных резонансов. Более того, можно надеяться [2], что при дезориентации рассеяние фактически происходит на углы, превышающие дифракционные и отвечающие пролетам частиц на малых расстояниях (меньше радиуса Вайскопфа). При этом в нелинейных резонансах, индуцированных дезориентирующими столкновениями, исключается не только провал Беннета, но и часть столкновительного провала, обусловленная дифракцией, сечение которой составляет значительную долю полного сечения рассеяния. В результате появляется возможность исследования дифференциального сечения рассеяния на «классические» углы, чувствительного к внутренней области потенциала взаимодействия.

Отметим, наконец, что с помощью выделения дезориентационной части нелинейных резонансов можно надеяться зарегистрировать эффекты изменения скорости при упругих столкновениях в случае электронных переходов атомов, т. е. там, где они обычно сильно маскированы ударным уширением и до настоящего времени не наблюдались.

Литература

[1] А. П. Кольченко, А. А. Пухов, С. Г. Раутиан, А. М. Шалагин. ЖЭТФ, *63*, 1173, 1972.

[2] В. П. Кочанов, С. Г. Раутиан, А. М. Шалагин. ЖЭТФ, *72*. 1358, 1977.

[3] С. Н. Атутов, А. К. Никитенко, С. Г. Раутиан, Э. Г. Сапрыкин. Письма ЖЭТФ, *13*, 232, 1971.

[4] Т. Ока. Тр. Вавиловской конф. по нелинейной оптике, выпуск 3, с. 210. Новосибирск, 1973.

[5] T. W. Meyer, C. R. Phodes. Phys. Rev. Lett., *32*, 637, 1974.

[6] R. G. Brewer, R. L. Shoemaker, S. Stenholm. Phys. Rev. Lett. *33*, 63, 1974.

[7] T. Oка. J. Chem. Phys., *65*, 1488, 1975.

[8] А. И. Бурштейн, Э. Г. Сапрыкин, Г. И. Смирнов. ЖЭТФ, *66*, 1570, 1974.

[9] А. М. Шалагин. ЖЭТФ, *73*, 99, 1977.

[10] С. Г. Раутиан, Г. И. Смирнов, А. М. Шалагин. ЖЭТФ, *62*, 2097, 1972.

Поступило в Редакцию 13 декабря 1978 г.

РЕПОЗИТОРИЙ ГГУ ИМЕНИ Ф. СКОРИНЫ