

ИНТЕРФЕРЕНЦИОННЫЕ ЭФФЕКТЫ ПРИ РАССЕЯНИИ ОДИНАКОВЫХ АТОМОВ В ПОЛЕ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

С. Г. Раутман*

Институт автоматики и электрометрии
Сибирского отделения Российской академии наук
630090, Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 22 мая 2000 г.

Рассмотрены свойства интеграла столкновений квантового кинетического уравнения типа Больцмана в условиях пространственно-неоднородных распределений сталкивающихся частиц, взаимодействующих с внешним электромагнитным полем. В рамках интеграла столкновений Казанцева выяснены элементы нелинейных резонансов и распределения по скоростям возбужденных атомов, обусловленные поляризационными переходами.

PACS: 32.70.Jz

1. ВВЕДЕНИЕ

В работе Казанцева [1] найден интеграл столкновений для случая диполь-дипольного взаимодействия при рассеянии двух одинаковых атомов, находящихся в поле резонансного излучения. Оказалось, что наряду со стандартными членами интеграл столкновений Казанцева содержит слагаемые, пропорциональные произведению наведенных полем поляризаций сталкивающихся атомов. Эти слагаемые описывают канал рассеяния, в котором поляризации при столкновении гасятся и один из атомов оказывается в возбужденном состоянии, а другой — в основном. Сечение такого процесса равно произведению амплитуд рассеяния с обменом возбуждением и без обмена, т. е. связано с интерференцией этих двух каналов. Физические проявления указанных поляризационных переходов (будем их так называть) не изучались в [1], равно как и вообще в литературе. Одна из задач данной статьи состоит в том, чтобы выяснить их роль в нелинейной спектроскопии газов (разд. 4).

Поляризационные переходы, предсказанные Казанцевым, отнюдь не специфичны для условий, принятых в [1]. В работе автора [2] показано, что похожие эффекты могут иметь место и при столкновении неодинаковых поляризованных атомов, при-

чем в результате столкновения их поляризации гасятся и генерируется поляризация на третьем переходе. В этом отношении прослеживается аналогия со стандартной схемой нелинейной спектроскопии: резонансное взаимодействие дихроматического поля со смежными переходами генерирует поляризацию на третьем, запрещенном, переходе (схемы комбинационного рассеяния, двухфотонной флуоресценции и двухфотонного поглощения, см., например, в [3, 4]).

Описанные ситуации ставят общий вопрос перед теорией кинетического уравнения. Дело в том, что поляризованность буферного партнера по столкновению означает его сильную пространственную неоднородность. Действительно, условие

$$kv_T \gg \Gamma$$

большой доплеровской ширины kv_T (k — волновое число, $v_T = \sqrt{2T/m}$ — средняя тепловая скорость, T — температура, m — масса атома) в сравнении с однородной шириной Γ эквивалентно условию

$$\lambda/2\pi \ll v_T/\Gamma \sim l_{fr}.$$

Следовательно, масштаб пространственной неоднородности внешнего поля (λ — длина волны), передаваемый поляризованной частице, оказывается значительно меньше длины свободного пробега l_{fr} . Отношение масштабов l_{fr}/λ в реальных условиях

*E-mail: fractal@iae.nsk.su

нелинейной спектроскопии газов может достигать нескольких порядков. Между тем в теории кинетического уравнения обычно принимается предположение о пространственной однородности термостата даже в спектроскопических задачах [3, 4]. Вопрос о роли пространственной неоднородности распределений сталкивающихся частиц анализируется в разд. 2 и 3.

2. ИНТЕГРАЛ СТОЛКНОВЕНИЙ ДЛЯ ПРОСТРАНСТВЕННО НЕОДНОРОДНОГО ГАЗА

Интеграл столкновений \mathbf{S} запишем в следующем стандартном виде (см., например, [3, 4])

$$\mathbf{S} = -\mathbf{S}^{(1)} + \mathbf{S}^{(2)}, \quad (2.1)$$

$$\mathbf{S}^{(1)} = \frac{i}{\hbar} \text{Sp}_b \{ \mathbf{T}(\boldsymbol{\rho} \times \boldsymbol{\rho}_b) - (\boldsymbol{\rho} \times \boldsymbol{\rho}_b) \mathbf{T}^+ \}, \quad (2.2)$$

$$\mathbf{S}^{(2)} = \frac{1}{i\hbar} \text{Sp}_b \{ \mathbf{T}(\boldsymbol{\rho} \times \boldsymbol{\rho}_b) \mathbf{K}^+ - \mathbf{K}(\boldsymbol{\rho} \times \boldsymbol{\rho}_b) \mathbf{T}^+ \}, \quad (2.3)$$

где $\mathbf{S}^{(1)}$ и $\mathbf{S}^{(2)}$ — члены ухода и прихода, $\boldsymbol{\rho}$ и $\boldsymbol{\rho}_b$ — одночастичные матрицы плотности исследуемой и буферной частиц, \mathbf{T} и \mathbf{K} — матрицы рассеяния [5], Sp_b обозначает вычисление шпура по всем переменным буферной частицы. Выделим поступательные степени свободы и воспользуемся импульсным представлением. Вместо собственно импульсных переменных $\mathbf{p}_a, \mathbf{p}'_a$ и $\mathbf{p}_b, \mathbf{p}'_b$ матриц плотности $\boldsymbol{\rho}(\mathbf{p}_a, \mathbf{p}'_a)$ и $\boldsymbol{\rho}_b(\mathbf{p}_b, \mathbf{p}'_b)$ удобно ввести переменные Вигнера

$$\begin{aligned} \mathbf{q} &= \frac{\mathbf{p}_a + \mathbf{p}'_a}{2}, & \boldsymbol{\tau} &= \mathbf{p}_a - \mathbf{p}'_a, \\ \mathbf{q}_b &= \frac{\mathbf{p}_b + \mathbf{p}'_b}{2}, & \boldsymbol{\tau}_b &= \mathbf{p}_b - \mathbf{p}'_b. \end{aligned} \quad (2.4)$$

Примем во внимание закон сохранения импульса центра инерции сталкивающихся частиц:

$$\begin{aligned} \mathbf{T}(\mathbf{p}_a \mathbf{p}_b | \mathbf{p}_{a1} \mathbf{p}_{b1}) &= \delta(\mathbf{p}_{a1} + \mathbf{p}_{b1} - \mathbf{p}_a - \mathbf{p}_b) \mathbf{T}(\mathbf{p} | \mathbf{p}_1), \\ \mathbf{p} &= \mu_b \mathbf{p}_a - \mu_a \mathbf{p}_b, & \mathbf{p}_1 &= \mu_b \mathbf{p}_{a1} - \mu_a \mathbf{p}_{b1}, \\ \mu_a &= \frac{m_a}{m_a + m_b}, & \mu_b &= \frac{m_b}{m_a + m_b}, \end{aligned} \quad (2.5)$$

где \mathbf{p} и \mathbf{p}_1 — импульсы относительного движения после и до столкновения соответственно. В указанных обозначениях $\mathbf{S}^{(1)}$ и $\mathbf{S}^{(2)}$ можно записать так:

$$\begin{aligned} \mathbf{S}^{(1)}(\mathbf{q}, \boldsymbol{\tau}) &= \frac{i}{\hbar} \widetilde{\text{Sp}}_b \int d\mathbf{q}_b d\boldsymbol{\tau}_b d\boldsymbol{\tau}_1 \delta(\boldsymbol{\tau} - \boldsymbol{\tau}_1 - \boldsymbol{\tau}_b) \times \\ &\times \{ \mathbf{T}(\mathbf{p} | \mathbf{p} - \boldsymbol{\tau}_b) \boldsymbol{\rho}(\mathbf{q} - \boldsymbol{\tau}_b/2, \boldsymbol{\tau}_1) \boldsymbol{\rho}_b(\mathbf{q}_b, \boldsymbol{\tau}_b) - \\ &- \boldsymbol{\rho}(\mathbf{q} + \boldsymbol{\tau}_b/2, \boldsymbol{\tau}_1) \boldsymbol{\rho}_b(\mathbf{q}_b, \boldsymbol{\tau}_b) \mathbf{T}^+(\mathbf{p}' + \boldsymbol{\tau}_b | \mathbf{p}') \}, \end{aligned} \quad (2.6)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{p} &= \bar{\mathbf{p}} + \frac{\mu_b \boldsymbol{\tau} + \mu_a \boldsymbol{\tau}_b}{2}, & \mathbf{p}' &= \bar{\mathbf{p}} - \frac{\mu_b \boldsymbol{\tau} + \mu_a \boldsymbol{\tau}_b}{2}, \\ \bar{\mathbf{p}} &= \mu_b \mathbf{q} - \mu_a \mathbf{q}_b, \end{aligned} \quad (2.7)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{S}^{(2)}(\mathbf{q}, \boldsymbol{\tau}) &= \frac{1}{i\hbar} \widetilde{\text{Sp}}_b \int d\mathbf{q}_b d\mathbf{q}_{b1} d\boldsymbol{\tau}_{b1} d\mathbf{q}_1 d\boldsymbol{\tau}_1 \times \\ &\times \delta(\boldsymbol{\tau} - \boldsymbol{\tau}_1 - \boldsymbol{\tau}_{b1}) \delta(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_{b1} - \mathbf{q} - \mathbf{q}_b) \times \\ &\times \{ \mathbf{T}(\mathbf{p}_1 | \mathbf{p}_2) \boldsymbol{\rho}(\mathbf{q}_1, \boldsymbol{\tau}_1) \boldsymbol{\rho}_b(\mathbf{q}_{b1}, \boldsymbol{\tau}_{b1}) \mathbf{K}^+(\mathbf{p}'_2 | \mathbf{p}'_1) - \\ &- \mathbf{K}(\mathbf{p}_1 | \mathbf{p}_2) \boldsymbol{\rho}(\mathbf{q}_1, \boldsymbol{\tau}_1) \boldsymbol{\rho}_b(\mathbf{q}_{b1}, \boldsymbol{\tau}_{b1}) \mathbf{T}^+(\mathbf{p}'_2 | \mathbf{p}'_1) \}, \end{aligned} \quad (2.8)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{p}_1 &= \bar{\mathbf{p}} + \frac{\mu_a \boldsymbol{\tau}}{2}, & \mathbf{p}_2 &= \bar{\mathbf{p}}_1 + \frac{\mu_b \boldsymbol{\tau}_1 - \mu_a \boldsymbol{\tau}_{b1}}{2}, \\ \bar{\mathbf{p}}_1 &= \mu_b \mathbf{q}_1 - \mu_a \mathbf{q}_{b1}, \\ \mathbf{p}'_1 &= \bar{\mathbf{p}} - \frac{\mu_b \boldsymbol{\tau}}{2}, & \mathbf{p}'_2 &= \bar{\mathbf{p}}_1 - \frac{\mu_b \boldsymbol{\tau}_1 - \mu_a \boldsymbol{\tau}_{b1}}{2}. \end{aligned} \quad (2.9)$$

Здесь $\widetilde{\text{Sp}}_b$ обозначает вычисление шпура по внутренним степеням свободы частицы b , матрицы $\boldsymbol{\rho}(\mathbf{q}, \boldsymbol{\tau})$, $\boldsymbol{\rho}_b(\mathbf{q}_b, \boldsymbol{\tau}_b)$ суть операторы по отношению к этим переменным.

Напомним, что величина $\boldsymbol{\tau}$ служит фурье-сопряженной переменной к координате \mathbf{r} в представлении Вигнера $\boldsymbol{\rho}^W(\mathbf{q}, \mathbf{r})$:

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\rho}^W(\mathbf{q}, \mathbf{r}) &= (2\pi\hbar)^{-3} \int \boldsymbol{\rho}(\mathbf{q}, \boldsymbol{\tau}) \exp(i\mathbf{r}\boldsymbol{\tau}/\hbar) d\boldsymbol{\tau}, \\ \boldsymbol{\rho}(\mathbf{q}, \boldsymbol{\tau}) &= \int \boldsymbol{\rho}^W(\mathbf{q}, \mathbf{r}) \exp(-i\mathbf{r}\boldsymbol{\tau}/\hbar) d\mathbf{r}. \end{aligned} \quad (2.10)$$

Иными словами, зависимость от переменной $\boldsymbol{\tau}$ импульсного представления характеризует пространственную неоднородность в представлении Вигнера. Следовательно, $\delta(\boldsymbol{\tau} - \boldsymbol{\tau}_1 - \boldsymbol{\tau}_b)$ и $\delta(\boldsymbol{\tau} - \boldsymbol{\tau}_1 - \boldsymbol{\tau}_{b1})$ в выражениях (2.6) и (2.8) говорят о том, что пространственная неоднородность интеграла столкновений «складывается» из пространственных неоднородностей матриц плотности сталкивающихся частиц. Из соотношений (2.6)–(2.9) можно увидеть, что аргументы как матриц рассеяния \mathbf{T} и \mathbf{K} , так и матриц плотности $\boldsymbol{\rho}$ и $\boldsymbol{\rho}_b$, зависят, вообще говоря, от $\boldsymbol{\tau}_1$ и $\boldsymbol{\tau}_b$, т. е. от пространственной неоднородности обеих сталкивающихся частиц. Поскольку диагональные и недиагональные (по внутренним квантовым числам) элементы обладают различными пространственными неоднородностями, этот вопрос будет рассмотрен позже, после конкретизации интеграла столкновений в отношении внутренних степеней свободы и геометрии внешнего поля. Сейчас отметим, что обычно применяемое выражение для \mathbf{S} отвечает пространственно-однородному распределению буферных частиц:

$$\boldsymbol{\rho}_b(\mathbf{q}_b, \boldsymbol{\tau}_b) = \boldsymbol{\rho}_b(\mathbf{q}_b) (2\pi\hbar)^3 \delta(\boldsymbol{\tau}_b). \quad (2.11)$$

В этом случае из формул (2.6)–(2.9) получаем

$$\begin{aligned} \mathbf{S}^{(1)}(\mathbf{q}, \tau) &= \\ &= \frac{i}{\hbar} (2\pi\hbar)^3 \widetilde{S}_{\mathbf{p}_b} \int d\mathbf{q}_b \{ \mathbf{T}(\mathbf{p}|\mathbf{p}) \rho(\mathbf{q}, \tau) \rho_b(\mathbf{q}_b) - \\ &\quad - \rho(\mathbf{q}, \tau) \rho_b(\mathbf{q}_b) \mathbf{T}^+(\mathbf{p}'|\mathbf{p}') \}, \\ \mathbf{S}^{(2)}(\mathbf{q}, \tau) &= \frac{1}{i\hbar} (2\pi\hbar)^3 \times \\ &\times \widetilde{S}_{\mathbf{p}_b} \int d\mathbf{q}_b d\mathbf{q}_{b1} d\mathbf{q}_1 \delta(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_{b1} - \mathbf{q} - \mathbf{q}_b) \times \\ &\times \{ \mathbf{T}(\mathbf{p}|\mathbf{p}_1) \rho(\mathbf{q}_1, \tau) \rho_b(\mathbf{q}_{b1}) \mathbf{K}^+(\mathbf{p}'_1|\mathbf{p}') - \\ &\quad - \mathbf{K}(\mathbf{p}|\mathbf{p}_1) \rho(\mathbf{q}_1, \tau) \rho_b(\mathbf{q}_{b1}) \mathbf{T}^+(\mathbf{p}'_1|\mathbf{p}') \}, \end{aligned} \quad (2.12)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{p} &= \bar{\mathbf{p}} + \frac{\mu_b \tau}{2}, \quad \mathbf{p}' = \bar{\mathbf{p}} - \frac{\mu_b \tau}{2}, \\ \mathbf{p}_1 &= \bar{\mathbf{p}}_1 + \frac{\mu_b \tau}{2}, \quad \mathbf{p}'_1 = \bar{\mathbf{p}}_1 - \frac{\mu_b \tau}{2}. \end{aligned} \quad (2.13)$$

Здесь, следовательно, $\mathbf{S}^{(1)}$ определяется амплитудами рассеяния «вперед». В члене прихода $\mathbf{S}^{(2)}$ аргументы матриц $\mathbf{T}(\mathbf{p}|\mathbf{p}_1)$ и $\mathbf{K}(\mathbf{p}'_1|\mathbf{p}')$ остаются различными из-за пространственной неоднородности, однако разности аргументов, играющие определяющую роль при малоугловом рассеянии, одинаковы:

$$\mathbf{p}'_1 - \mathbf{p}' = \mathbf{p}_1 - \mathbf{p}.$$

Согласно формулам (2.12) и (2.13), $\mathbf{S}(\mathbf{q}, \tau)$ зависит от τ и через $\rho(\mathbf{q}, \tau)$, и через аргументы матриц рассеяния. Следовательно, даже в простом случае (2.11) интеграл столкновений в представлении Вигнера нелокально зависит от координаты \mathbf{r} . При пространственной неоднородности ρ_b эффект нелокальной зависимости будет усиливаться.

Пространственная неоднородность буферных частиц может быть вызвана их взаимодействием с внешним электромагнитным полем. С этой точки зрения наибольший интерес представляют столкновения одинаковых частиц, когда поле в равной мере воздействует на ρ и ρ_b . В таком случае $\mu_a = \mu_b = 1/2$. Возможны и более сложные ситуации, когда атомы разные, а поле содержит несколько спектральных компонент, частоты которых связаны определенными комбинационными соотношениями, и в результате имеет место резонансное взаимодействие с несколькими смежными переходами. Подобные ситуации указаны в работе [2].

Для спектроскопических приложений интересна периодическая неоднородность, вызванная, напри-

мер, плоской монохроматической волной. В этом случае представление Вигнера имеет вид

$$\begin{aligned} \rho^W(\mathbf{q}, \mathbf{r}) &= \sum_{s_a} \rho_{s_a}(\mathbf{q}) \exp(is_a \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}), \\ \rho^W(\mathbf{q}_b, \mathbf{r}) &= \sum_{s_b} \rho_{s_b}(\mathbf{q}_b) \exp(is_b \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \end{aligned} \quad (2.14)$$

(s_a, s_b — целые числа), а в импульсном представлении

$$\begin{aligned} \rho(\mathbf{q}, \tau) &= (2\pi\hbar)^3 \sum_{s_a} \rho_{s_a}(\mathbf{q}) \delta(\tau - s_a \hbar \mathbf{k}), \\ \rho_b(\mathbf{q}_b, \tau_b) &= \sum_{s_b} \rho_{s_b}(\mathbf{q}_b) \delta(\tau_b - s_b \hbar \mathbf{k}). \end{aligned} \quad (2.15)$$

В таких условиях для интеграла столкновений имеем

$$\begin{aligned} \mathbf{S}(\mathbf{q}\tau) &= (2\pi\hbar)^3 \times \\ &\times \sum_{s_a s_b} \delta[\tau - (s_a + s_b) \hbar \mathbf{k}] S_{s_a s_b}(\mathbf{q}), \end{aligned} \quad (2.16)$$

$$\begin{aligned} S_{s_a s_b}^{(1)}(\mathbf{q}) &= \frac{i}{\hbar} (2\pi\hbar)^3 \widetilde{S}_{\mathbf{p}_b} \sum_{s_a s_b} \int d\mathbf{q} \{ \mathbf{T}(\mathbf{p}|\mathbf{p} - s_b \hbar \mathbf{k}) \times \\ &\times \rho_{s_a}(\mathbf{q} - s_a \hbar \mathbf{k} / 2) \rho_{s_b}(\mathbf{q}_b) - \rho_{s_a}(\mathbf{q} + s_b \hbar \mathbf{k} / 2) \rho_{s_b}(\mathbf{q}_b) \times \\ &\quad \times \mathbf{T}(\mathbf{p}' + s_b \hbar \mathbf{k}|\mathbf{p}') \}, \end{aligned} \quad (2.17)$$

$$\begin{aligned} S_{s_a s_b}^{(2)}(\mathbf{q}) &= \frac{1}{i\hbar} (2\pi\hbar)^3 \times \\ &\times \widetilde{S}_{\mathbf{p}_b} \sum_{s_a s_b} \int d\mathbf{q}_b d\mathbf{q}_{b1} d\mathbf{q}_1 \delta(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_{b1} - \mathbf{q} - \mathbf{q}_b) \times \\ &\times \{ \mathbf{T}(\mathbf{p}_1|\mathbf{p}_2) \rho_{s_a}(\mathbf{q}_1) \rho_{s_b}(\mathbf{q}_{b1}) \mathbf{K}^+(\mathbf{p}'_2|\mathbf{p}'_1) - \\ &\quad - \mathbf{K}(\mathbf{p}_1|\mathbf{p}_2) \rho_{s_a}(\mathbf{q}_1) \rho_{s_b}(\mathbf{q}_{b1}) \mathbf{T}^+(\mathbf{p}'_2|\mathbf{p}'_1) \}, \end{aligned} \quad (2.18)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{p} &= \bar{\mathbf{p}} + \frac{(\mu_b s_a + s_b) \hbar \mathbf{k}}{2}, \\ \mathbf{p}' &= \bar{\mathbf{p}} - \frac{(\mu_b s_a + s_b) \hbar \mathbf{k}}{2}, \\ \mathbf{p}_1 &= \bar{\mathbf{p}} + \frac{\mu_a s_b \hbar \mathbf{k}}{2}, \quad \mathbf{p}'_1 = \bar{\mathbf{p}} - \frac{\mu_a s_b \hbar \mathbf{k}}{2}, \\ \mathbf{p}_2 &= \bar{\mathbf{p}}_1 + \frac{(\mu_b s_a - \mu_a s_b) \hbar \mathbf{k}}{2}, \\ \mathbf{p}'_2 &= \bar{\mathbf{p}}_1 - \frac{(\mu_b s_a - \mu_a s_b) \hbar \mathbf{k}}{2}. \end{aligned} \quad (2.19)$$

Из приведенных выражений можно увидеть, что периодическая пространственная неоднородность приводит к некоторому аналогу эффекта отдачи, что проявляется в аргументах и амплитудах рассеяния, и

матриц плотности. В члене ухода разность правого и левого аргументов амплитуд рассеяния кратна импульсу фотона hk .

Возможность проявления пространственной неоднородности через интеграл столкновений задается теми же параметрами, что и в случае динамического взаимодействия с внешним полем [3, 4, 6], т. е. отношением hk к ширине структуры в распределении $\rho(\mathbf{q})$. Пусть эта ширина масквеллова $\sqrt{2Tm}$. Тогда в видимой области спектра и при комнатных температурах

$$\frac{hk}{\sqrt{2Tm}} \sim 10^{-5},$$

и проявление эффекта отдачи ничтожно. Если же $\rho(\mathbf{q})$ обладает резкой структурой Беннета с характерной шириной $m\Gamma/k$ (Γ — однородная ширина линии), то отношение

$$\frac{hk}{m\Gamma/k} = \frac{hk^2}{m\Gamma}$$

может быть порядка единицы при достаточно малых значениях

$$\frac{m\Gamma}{k} \sim 10^{-5} \sqrt{Tm}.$$

Подобные условия реализованы при экспериментальном изучении расщепления нелинейных резонансов из-за эффекта отдачи (см., например, [7, 8]).

Влияние пространственной неоднородности через матрицы рассеяния определяется другим параметром, а именно, произведением k и эффективного радиуса взаимодействия ρ_W (радиус Вайскопфа):

$$k\rho_W = 2\pi\rho_W/\lambda.$$

В случае диполь-дипольного взаимодействия ρ_W может составлять величину порядка 10^{-6} см, так что в видимой области спектра ($\lambda = 0.5 \cdot 10^{-4}$ см) имеем

$$k\rho_W \approx 0.1,$$

т. е. вполне заметную величину. Особенно чувствительно к этому эффекту может быть рассеяние вперед.

3. ИНТЕГРАЛ СТОЛКНОВЕНИЙ ДВУХУРОВНЕВЫХ АТОМОВ В ПОЛЕ БЕГУЩЕЙ ПЛОСКОЙ МОНОХРОМАТИЧЕСКОЙ ВОЛНЫ

При дальнейшей конкретизации интеграла столкновений для той или иной структуры внутренних состояний атомов воспользуемся известными

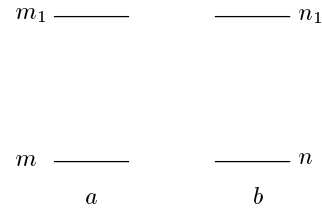


Рис. 1. Схема уровней сталкивающихся атомов a (m_1, m) и b (n_1, n)

соотношениями между элементами матриц \mathbf{T} , \mathbf{K} и амплитудами рассеяния f (см., например, [3, 4]):

$$\begin{aligned} \mathbf{T}(\alpha\beta\mathbf{p}_a\mathbf{p}_b|\alpha_1\beta_1\mathbf{p}_{a1}\mathbf{p}_{b1}) &= \\ &= -(4\pi^2 h\mu)^{-1} f(\alpha\beta\mathbf{p}|\alpha_1\beta_1\mathbf{p}_1) \times \\ &\quad \delta(\mathbf{p}_{a1} + \mathbf{p}_{b1} - \mathbf{p}_a - \mathbf{p}_b) \times \\ &\quad \times \exp[i(E_\alpha + E_\beta - E_{\alpha_1} - E_{\beta_1})t/h], \end{aligned} \quad (3.1)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{K}(\alpha\beta\mathbf{p}_a\mathbf{p}_b|\alpha_1\beta_1\mathbf{p}_{a1}\mathbf{p}_{b1}) &= \\ &= -2\pi i \mathbf{T}(\alpha\beta\mathbf{p}_a\mathbf{p}_b|\alpha_1\beta_1\mathbf{p}_{a1}\mathbf{p}_{b1}) \times \\ &\quad \delta_+ [E_{\alpha_1} + E_{\beta_1} - E_\alpha - E_\beta + (\mathbf{p}_1^2 - \mathbf{p}^2)/2\mu], \end{aligned} \quad (3.2)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{p} &= \mu_b \mathbf{p}_a - \mu_a \mathbf{p}_b, \quad \mathbf{p}_1 = \mu_b \mathbf{p}_{a1} - \mu_a \mathbf{p}_{b1}, \\ \mu &= \frac{m_a m_b}{m_a + m_b}. \end{aligned} \quad (3.3)$$

Здесь α , α_1 и β , β_1 обозначают наборы квантовых чисел внутренних движений частиц « a » и « b », E_α и E_β — энергии состояний.

Пусть пространственную неоднородность газа создает внешнее электромагнитное поле в виде плоской бегущей электромагнитной волны, зависящей от времени и координат по закону $\exp[-i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})]$, где ω и \mathbf{k} — частота и волновой вектор. В таком поле, как это легко установить, элементы матрицы плотности, диагональные по главным квантовым числам, не зависят от \mathbf{r} , а недиагональные пропорциональны $\exp(\pm i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})$. Следовательно, числа s_a, s_b в формуле (2.15) принимают значения 0 и ± 1 .

Будем рассматривать резонансное диполь-дипольное взаимодействие сталкивающихся атомов. В этом случае рассеяние происходит только тогда, когда взаимодействующие атомы находятся в состояниях с различными энергиями, т. е. отличны от нуля амплитуды рассеяния $f(\alpha\beta\mathbf{p}|\alpha_1\beta_1\mathbf{p}_1)$ с $E_\alpha \neq E_\beta$ и $E_{\alpha_1} \neq E_{\beta_1}$ [1]. Вместе с тем, выполняется условие $E_\alpha + E_\beta = E_{\alpha_1} + E_{\beta_1}$. Будем пользоваться следующими обозначениями: m и m_1 обозначают совокупность квантовых чисел соответственно основного и

возбужденного состояний частицы a , n и n_1 — то же для частицы b (рис. 1). Имея в виду случай одинаковых сталкивающихся частиц, можно опустить индекс b у ρ_b .

Для перечисленных условий из формулы (2.17) получаем выражения для недиагонального и диагонального (по главным квантовым числам) элементов члена ухода интеграла столкновений:

$$\begin{aligned} S_1^{(1)}(m_1 m \mathbf{q}) &= \sum_{s_a + s_b = 1} S_{s_a s_b}^{(1)}(m_1 m \mathbf{q}) = \\ &= (2\pi h / i\mu) \tilde{S}_{\mathbf{p}_b} \int d\mathbf{q}_b \times \\ &\times \{f(m_1 n \bar{\mathbf{p}} + h\mathbf{k}/4 | m'_1 n' \bar{\mathbf{p}} + h\mathbf{k}/4) \rho_1 \times \\ &\times (m'_1 m \mathbf{q}) \rho_0(n' n \mathbf{q}_b) - \\ &- \rho_1(m_1 m' \mathbf{q}) \rho_0(n_1 n'_1 \mathbf{q}_b) \times \\ &\times f^+(m'_1 n'_1 \bar{\mathbf{p}} - h\mathbf{k}/4 | m n_1 \bar{\mathbf{p}} - h\mathbf{k}/4) + \\ &+ f(m_1 n \bar{\mathbf{p}} + h\mathbf{k}/2 | m'_1 n_1 \bar{\mathbf{p}} - h\mathbf{k}/2) \times \\ &\times \rho_0(m' m \mathbf{q} - h\mathbf{k}/2) \rho_1(n_1 n \mathbf{q}_b) - \\ &- \rho_0(m_1 m'_1 \mathbf{q} + h\mathbf{k}/2) \rho_1(n_1 n \mathbf{q}_b) \times \\ &\times f^+(m'_1 n \bar{\mathbf{p}} + h\mathbf{k}/2 | m n_1 \bar{\mathbf{p}} - h\mathbf{k}/2)\}, \quad (3.4) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} S_0^{(1)}(m_1 m'_1 \mathbf{q}) &= \sum_{s_a + s_b = 0} S_{s_a s_b}^{(1)}(m_1 m'_1 \mathbf{q}) = \\ &= \frac{2\pi h}{i\mu} \tilde{S}_{\mathbf{p}_b} \int d\mathbf{q}_b \times \\ &\times \{f(m_1 n \bar{\mathbf{p}} | m''_1 n' \bar{\mathbf{p}}) \rho_0(m''_1 m'_1 \mathbf{q}) \rho_0(n' n \mathbf{q}_b) - \\ &- \rho_0(m_1 m'_1 \mathbf{q}_b) \rho_0(n' n \mathbf{q}_b) f^+(m''_1 n \bar{\mathbf{p}} | m'_1 n' \bar{\mathbf{p}}) + \\ &+ f(m_1 n \bar{\mathbf{p}} + h\mathbf{k}/4 | m n_1 \bar{\mathbf{p}} - 3h\mathbf{k}/4) \times \\ &\times \rho_{-1}(m m'_1 \mathbf{q} - h\mathbf{k}/2) \rho_1(n_1 n \mathbf{q}_b) - \\ &- \rho_1(m_1 m \mathbf{q} - h\mathbf{k}/2) \rho_{-1}(n n_1 \mathbf{q}_b) \times \\ &\times f^+(m n_1 \bar{\mathbf{p}} - 3h\mathbf{k}/4 | m'_1 n \bar{\mathbf{p}} + h\mathbf{k}/4)\}. \quad (3.5) \end{aligned}$$

Здесь $\rho_1(m_1 m \mathbf{q})$ и т. д. суть матрицы относительно магнитных квантовых чисел. Символ $\tilde{S}_{\mathbf{p}_b}$ обозначает вычисление шпура по этим числам атома b .

В соотношениях (3.4) и (3.5) фигурируют по четыре слагаемых, обусловленных упругим рассеянием без обмена возбуждением (первые два члена в формулах (3.4) и (3.5)) и с обменом возбуждением (третьи и четвертые члены). В безобменные слагаемые входят амплитуды рассеяния «вперед», причем аргументы амплитуд рассеяния в диагональном и недиагональном членах отличаются на $\pm h\mathbf{k}/4$. В «обменных» слагаемых разность левых и правых аргументов амплитуд рассеяния равна импульсу фотона $h\mathbf{k}$, т. е. важно рассеяние не на нулевой угол.

В $S_1^{(1)}(m_1 m \mathbf{q})$ входят произведения нулевых гармоник матриц плотности, отвечающих заселенно-

стям, и первых гармоник недиагональных элементов. Импульсные аргументы нулевых гармоник в «обменных» слагаемых (четыре последние строчки в (3.4)) испытывают сдвиг на $\pm h\mathbf{k}/2$, т. е. имеет место аналог эффекта отдачи.

В диагональном элементе $S_0^{(1)}(m_1 m'_1 \mathbf{q})$ фигурируют произведения нулевых гармоник («безобменное» рассеяние) и произведения гармоник ± 1 (обмен возбуждением). Последнее означает, что при столкновении поляризованных частиц оптические колебания в них гасятся и возникает новый столкновительный канал для переходов заселенностей (поляризационные переходы частиц). Таким образом, этот результат Казанцева [1], полученный им для случая моментов уровней 0 и 1, справедлив при произвольных значениях моментов. Ниже будет показано, что поляризационный механизм переходов частиц приводит к своеобразным эффектам в структуре Беннета распределения по скоростям (разд. 4).

Из выражения (2.8) следует, что в рассматриваемых условиях резонансного рассеяния член прихода для недиагонального элемента интеграла столкновений строго равен нулю:

$$S^{(2)}(m_1 m \mathbf{q}) = 0. \quad (3.6)$$

Для диагонального же элемента интеграла столкновений член прихода дается формулой

$$\begin{aligned} S_0^{(2)}(m_1 m'_1 \mathbf{q}) &= \sum_{s_a + s_b = 0} S_{s_a s_b}^{(2)}(m_1 m'_1 \mathbf{q}) = \\ &= 2\mu^{-1} \tilde{S}_{\mathbf{p}_b} \int d\mathbf{q}_b d\mathbf{q}_{b1} d\mathbf{q}_1 \delta(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_{b1} - \mathbf{q} - \mathbf{q}_b) \times \\ &\times \{f(m_1 n \bar{\mathbf{p}} | m''_1 n' \bar{\mathbf{p}}_1) \rho_0(m''_1 m'_1 \mathbf{q}_1) \rho_0(n' n'' \mathbf{q}_{b1}) \times \\ &\times f^+(m''_1 n'' \bar{\mathbf{p}}_1 | m'_1 n \bar{\mathbf{p}}) \delta(\bar{\mathbf{p}}_1^2 - \bar{\mathbf{p}}^2) + \\ &+ f(m_1 n \bar{\mathbf{p}} | m n_1 \bar{\mathbf{p}}_1) \times \\ &\times \rho_0(m m' \mathbf{q}_1) \rho_0(n_1 n'_1 \mathbf{q}_{b1}) \times \\ &\times f^+(m' n'_1 \bar{\mathbf{p}}_1 | m'_1 n \bar{\mathbf{p}}) \delta(\bar{\mathbf{p}}_1^2 - \bar{\mathbf{p}}^2) + \\ &+ f(m_1 n \bar{\mathbf{p}} | m''_1 n' \bar{\mathbf{p}}_1 + h\mathbf{k}/2) \times \\ &\times \rho_1(m''_1 m \mathbf{q}_1) \rho_{-1}(n' n_1 \mathbf{q}_{b1}) \times \\ &\times f^+(m n_1 \bar{\mathbf{p}}_1 - h\mathbf{k}/2 | m'_1 n \bar{\mathbf{p}}) \times \\ &\times (\delta_- [(\bar{\mathbf{p}}_1 - h\mathbf{k})^2 - \bar{\mathbf{p}}^2] + \delta_+ [(\bar{\mathbf{p}}_1 + h\mathbf{k})^2 - \bar{\mathbf{p}}^2]) + \\ &+ f(m_1 n \bar{\mathbf{p}} | m n_1 \bar{\mathbf{p}}_1 - h\mathbf{k}/2) \times \\ &\times \rho_{-1}(m m'' \mathbf{q}_1) \rho_1(n_1 n' \mathbf{q}_{b1}) \times \\ &\times f^+(m'_1 n' \bar{\mathbf{p}}_1 + h\mathbf{k}/2 | m'_1 n \bar{\mathbf{p}}) \times \\ &\times \delta_- [(\bar{\mathbf{p}}_1 + h\mathbf{k}/2)^2 - \bar{\mathbf{p}}^2] + \\ &+ (\delta_+ [(\bar{\mathbf{p}}_1 - h\mathbf{k}/2)^2 - \bar{\mathbf{p}}^2])\}. \quad (3.7) \end{aligned}$$

Здесь первые два члена подынтегральной функции дают вклад каналов рассеяния без и с обменом воз-

буждением. Они имеют стандартный вид: произведения амплитуд рассеяния дают сечения без обмена (первый член) и с обменом возбуждением (второй член). Третий и четвертый члены обусловлены интерференцией указанных каналов и содержат произведения амплитуд рассеяния без и с обменом возбуждением. Эти слагаемые и описывают поляризационные переходы. Импульсные аргументы амплитуд рассеяния в них имеют дополнительные сдвиги на величину $\hbar\mathbf{k}/2$, что связано с исчезновением поляризации при столкновении точно так же, как это имеет место при поглощении или испускании фотонов. Кроме того, обсуждаемые члены содержат суммы δ_- - и δ_+ -функций, не сводящиеся к δ -функции из-за эффекта отдачи.

Таким образом, даже простейшая пространственная неоднородность распределения случайно сталкивающихся поляризованных частиц, вносимая бегущей плоской монохроматической волной, может приводить к определенным явлениям, близких к тем, что дает внешнее поле из-за динамического взаимодействия частиц с полем. При условиях, указанных в конце разд. 2, эти эффекты могут оказаться существенными. В случае стоячей электромагнитной волны разложения типа (2.14)–(2.16) матриц плотности и интеграла столкновений будут содержать не две, а бесконечное число гармоник. Гармоники высокого порядка будут приводить соответственно к большим сдвигам на величины $s_a\hbar\mathbf{k}$, $s_b\hbar\mathbf{k}$.

Формулы (3.5) и (3.7) дают интеграл столкновений для возбужденных частиц. Интеграл столкновений $S(mm'\mathbf{q})$ для частиц в основном состоянии получается из этих выражений заменой индексов и знака \mathbf{k} :

$$\begin{aligned} m &\leftrightarrow m_1, & m' &\leftrightarrow m'_1, & m'' &\leftrightarrow m''_1, \\ n &\leftrightarrow n_1, & n' &\leftrightarrow n'_1, & \mathbf{k} &\leftrightarrow -\mathbf{k}. \end{aligned} \quad (3.8)$$

Отметим, что в выражениях (3.4), (3.5) и (3.7) в неявном виде содержатся эффекты, нелинейные по интенсивности поля: произведения $\rho_1\rho_{-1}$ и заселенности возбужденных состояний зависят от интенсивности излучения.

4. ПОЛЯРИЗАЦИОННЫЕ ПЕРЕХОДЫ В СИСТЕМЕ ДВУХ УРОВНЕЙ С МОМЕНТАМИ 0 И 1

Известно, что резонансное взаимодействие атома с плоской монохроматической волной приводит при большом доплеровом уширении к образованию резкой структуры в распределении атомов по проекции

скорости на волновой вектор поля. Эта структура Беннета детально изучена экспериментально и теоретически в огромном количестве работ и является основным физическим образом в лазерной нелинейной спектроскопии газов. Однако в теоретических рассуждениях не принимались во внимание поляризационные переходы, и поэтому интересно выяснить их влияние на структуру Беннета и нелинейные резонансы. Этот вопрос разбирается ниже на примере диполь-дипольного взаимодействия двухуровневых атомов с моментами 0 и 1 основного и возбужденного состояний. Интеграл столкновений для такого случая найден Казанцевым в работе [1], и он будет использован ниже.

Прежде чем переходить к непосредственному анализу, сделаем несколько предварительных замечаний. Одно из упрощений, сделанное в [1], состоит в том, что не принято во внимание изменение скорости атомов в столкновениях как в обменном, так и в безобменном каналах. Оценки показывают, что реальные изменения направления скорости составляют 10^{-2} – 10^{-3} радиана. Возможность проявления такого изменения скорости зависит от соотношения между доплеровой и однородной ширинами. Ниже будет принята модель, использованная Казанцевым в [1]. В отсутствие изменения скорости члены ухода и прихода интеграла столкновений объединяются в единое выражение и в таком объединенном виде и представлены в [1]. В [1] также не приняты во внимание особенности интеграла столкновений, связанные с пространственной неоднородностью и разобраны в разд. 2 и 3. Впрочем, эффект отдачи более тонкий, чем изменение скорости, и пренебрежение последним делает естественным пренебрежение первым.

Отметим два формальных обстоятельства. Вместо импульса Вигнера Казанцев оперирует скоростью $\mathbf{v} \equiv \mathbf{q}/m$. Конкретные значения моментов (1 и 0) позволяют сделать некоторые упрощения, а именно, при описании угловых переменных оптического электрона Казанцев использует не сферические функции $Y_{JM}(\theta\varphi)$, а их линейные комбинации $Y_{JM} \pm Y_{JM}^*$ [9]. В итоге (для $J = 1$) вместо сферических углов θ, φ используются x_j/r , а вместо магнитных чисел — индексы j декартовых координат x_j .

В таком декартовом представлении матрица плотности возбужденного состояния есть тензор второго ранга, $\rho_{ij}(\mathbf{v})$, который разложен в [1] на

неприводимые тензоры:

$$\begin{aligned} \rho_{ij}(\mathbf{v}) &= \frac{1}{3}\delta_{ij}\eta(\mathbf{v}) + i\varepsilon_{iju}\eta_l(\mathbf{v}) + \eta_{ij}(\mathbf{v}), \\ \eta_{ij} &= \eta_{ji}, \quad \eta_{ii} = 0, \end{aligned} \quad (4.1)$$

причем $\eta(\mathbf{v})$, $\eta_l(\mathbf{v})$ и $\eta_{ij}(\mathbf{v})$ вещественны, ε_{iju} — единичный полностью антисимметричный тензор. Недиагональный элемент $\rho(m_1 m \mathbf{v})$ в декартовом представлении есть вектор, компоненты которого будем обозначать $\rho_i(\mathbf{v})$. Наконец, элемент матрицы плотности основного состояния ($J = 0$) есть скаляр, обозначаемый далее как $\rho(\mathbf{v})$.

Интеграл столкновений Казанцева имеет очень сложный вид, и частично эта сложность обусловлена учетом анизотропии столкновений (эффект ветра). Согласно небольшому числу работ, в которых сделаны расчеты для конкретных потенциалов [1,10,11], спектроскопические проявления эффекта ветра сравнительно невелики, контур линии изменяется не более, чем на несколько процентов. Поэтому, чтобы выделить роль поляризационных переходов и определить их влияние на структуру Беннета и нелинейные резонансы по возможности в простом и наглядном виде, эффект ветра ниже не принимается во внимание.

Кинетические уравнения для $\rho_i(\mathbf{v})$ и неприводимых тензоров (4.1) с интегралом столкновений Казанцева [1] при взаимодействии с бегущей плоской монохроматической волной имеют вид

$$[\Gamma - i(\Omega - \mathbf{k}\mathbf{v})] \rho_i = i\tilde{\nu}(\rho - \eta)\langle\rho_i\rangle + i\tilde{\nu}(\langle\rho_i\rangle\rho - \rho_{ij}\langle\rho_j\rangle) + i(G_i\rho - \rho_{ij}G_j), \quad (4.2)$$

$$(\gamma_0 + \nu_0\langle\rho\rangle)\eta = \tilde{\nu}_0\rho\langle\eta\rangle - \tilde{\nu}_0 2 \operatorname{Re}(i\rho_k\langle\rho_k^*\rangle) - 2 \operatorname{Re}(i\rho_k G_k^*), \quad (4.3)$$

$$(\gamma_0 + \nu_1\langle\rho\rangle)\eta_i = \tilde{\nu}_1\rho\langle\eta_i\rangle + \tilde{\nu}_1 \operatorname{Re}(\varepsilon_{ilk}\rho_k\langle\rho_l^*\rangle) + \operatorname{Re}(\varepsilon_{ilk}\rho_k G_l^*), \quad (4.4)$$

$$\begin{aligned} (\gamma_0 + \nu_2\langle\rho\rangle)\eta_{ij} &= \tilde{\nu}_2\rho\langle\eta_{ij}\rangle - \\ &- \tilde{\nu}_2 \operatorname{Re}\left[i(\rho_i\langle\rho_j^*\rangle + \rho_j\langle\rho_i\rangle - \frac{2}{3}\delta_{ij}\rho_k\langle\rho_k^*\rangle)\right] - \\ &- \operatorname{Re}\left[i\left(\rho_i G_j^* + \rho_j G_i^* - \frac{2}{3}\delta_{ij}\rho_k G_k^*\right)\right], \end{aligned} \quad (4.5)$$

$$\eta + \rho = W(\mathbf{v}), \quad (4.6)$$

$$\Omega = \omega - \omega_{m_1 m}, \quad G_i = \frac{dE_i}{2h}, \quad \Gamma = \gamma_0 + \nu. \quad (4.7)$$

Здесь угловые скобки обозначают интегрирование по скорости, d — приведенный матричный элемент дипольного момента для перехода $m - m_1$, E_i — декартова компонента напряженности поля, γ_0 — вероятность спонтанного распада возбужденного состояния. В [1] не принято во внимание изменение скорости при столкновении, чем и объясняется простой вид уравнения (4.6) для заселенности ρ основного состояния ($W(\mathbf{v})$ — максвеллово распределение). Набор столкновительных частот характеризует релаксацию заселенности (η), ориентации (η_l) и выстраивания (η_{ij}) возбужденного состояния, а также поляризации (ρ_i). Значения этих частот найдены Казанцевым численными расчетами. Все они пропорциональны параметру

$$\gamma = \gamma_0(\lambda/2\pi)^3 N \quad (4.8)$$

(N — концентрация атомов) и даются формулами

$$\begin{aligned} \nu &= 5.674\gamma, & \tilde{\nu} &= -1.168\gamma, & \bar{\nu} &= -0.72\gamma, \\ \nu_0 &= 5.30\gamma, & \tilde{\nu}_0 &= \nu_0, & \bar{\nu}_0 &= 0.783\gamma, \\ \nu_1 &= 7.147\gamma, & \tilde{\nu}_1 &= -1.473\gamma, & \bar{\nu}_1 &= -0.944\gamma, \\ \nu_2 &= 7.623\gamma, & \tilde{\nu}_2 &= 0.273\gamma, & \bar{\nu}_2 &= 0.095\gamma. \end{aligned} \quad (4.9)$$

Кроме равенства $\tilde{\nu}_0 = \nu_0$, строго выполняются соотношения

$$\nu = \nu_1 + \tilde{\nu}_1, \quad 2\bar{\nu}_1 = \bar{\nu} + \tilde{\nu}, \quad (4.10)$$

так что из 12 параметров (4.9) независимы 9. Зависимость ν_κ , $\tilde{\nu}_\kappa$, $\bar{\nu}_\kappa$ от κ ($\kappa = 0, 1, 2$) означает, что модель невырожденных состояний в данном случае будет плохим приближением. Слагаемые в правых частях уравнений (4.2)–(4.5) с частотами $\tilde{\nu}$, $\tilde{\nu}_\kappa$ обусловлены передачей возбуждения при столкновениях, слагаемые с G_i — взаимодействием с полем. Нас, главным образом, будут интересовать слагаемые с частотами $\bar{\nu}_\kappa$, описывающие поляризационные переходы частиц, ориентации и выстраивания.

Обращает на себя внимание аналогия поляризационных и полевых слагаемых: первые получаются из вторых заменой

$$G_i \rightarrow \bar{\nu}_\kappa\langle\rho_i\rangle. \quad (4.11)$$

Следовательно, поляризационные переходы эквивалентны вынужденным в некотором эффективном поле. Аналогия усиливается тем обстоятельством, что при слабых полях $\rho_i \propto iG_i$, т.е. эффективное поле пропорционально амплитуде внешнего поля. Существенное различие заключено в множителе i (сдвиг фазы на $\pi/2$), что приводит, как будет показано, к нетривиальной форме нелинейных резонансов. Указанная аналогия поясняет наличие эффекта

отдачи в интеграле столкновений, о чем шла речь в разд. 3.

Отметим важный факт: интегралы поляризационных слагаемых по \mathbf{v} , как видно из формул (4.3)–(4.5), строго равны нулю. Поэтому

$$\begin{aligned} \gamma_0 \langle \eta \rangle &= -2 \operatorname{Re} (i \langle \rho \rangle G_k^*), \\ [\gamma_0 + (\nu_1 - \tilde{\nu}_1) \langle \rho \rangle] \langle \eta_l \rangle &= \operatorname{Re} (\varepsilon_{ilk} \langle \rho_k \rangle G_l^*), \\ [\gamma_0 + (\nu_2 - \tilde{\nu}_2) \langle \rho \rangle] \langle \eta_{ij} \rangle &= \\ &= -\operatorname{Re} \left[i \left(\langle \rho_i \rangle G_j^* + \langle \rho_j \rangle G_i^* - \frac{2}{3} \delta_{ij} \langle \rho_k \rangle G_k^* \right) \right]. \end{aligned} \quad (4.12)$$

Таким образом, «столкновения когерентностей» (или поляризаций) не влияют на интегральные по скоростям заселенности $\langle \eta \rangle$, ориентацию $\langle \eta_l \rangle$ и выстраивание $\langle \eta_{ij} \rangle$, они изменяют только распределение по скоростям, создавая в них знакопеременные элементы структуры на возбужденном уровне. Изменения $\langle \eta \rangle$, $\langle \eta_l \rangle$, $\langle \eta_{ij} \rangle$ генерируются только вынужденными переходами, непосредственно индуцированными полем. В силу уравнения (4.6) такая же знакопеременная структура существует в заселенности $\rho(\mathbf{v})$ нижнего уровня.

Полный интеграл столкновений Казанцева содержит слагаемые, дополнительные к выписанным в формулах (4.2)–(4.5) и обусловленные эффектом ветра (в частности, параметр Γ в [1] имеет тензорный характер и зависит от скорости, опущены также слагаемые, связывающие уравнения для заселенности и выстраивания). Они отброшены нами по приведенным выше причинам.

Систему уравнений (4.2)–(4.6) будем решать методом последовательных приближений по амплитуде поля. В нулевом приближении все атомы находятся в основном состоянии и обладают максвелловым распределением по скоростям:

$$\begin{aligned} \eta &= \eta_l = \eta_{ij} = 0, \\ \rho(\mathbf{v}) &= W(\mathbf{v}) = (\pi^{1/2} v_T)^{-3} \exp [-(\mathbf{v}/v_T)^2], \\ v_T &= \sqrt{2T/m}. \end{aligned} \quad (4.13)$$

В линейном по G_i приближении уравнение для $\rho_i(\mathbf{v})$,

$$\begin{aligned} [\Gamma - i(\Omega - \mathbf{k}\mathbf{v})] \rho_i(\mathbf{v}) &= i\nu_q \langle \rho_i \rangle + iG_i W(\mathbf{v}), \\ \nu_q &= \tilde{\nu} + \bar{\nu} = 2\bar{\nu}_1 = -1.888\gamma, \end{aligned} \quad (4.14)$$

имеет вид стандартной модели сильных столкновений с чисто мнимой частотой прихода $i\nu_q$. Решение уравнения (4.14) имеет вид (см. [3, 4, 12])

$$\begin{aligned} \rho_i(\mathbf{v}) &= iG_i L(\Omega, \mathbf{v}), \\ L(\Omega, \mathbf{v}) &= \frac{W(\mathbf{v})}{[\Gamma - i(\Omega - \mathbf{k}\mathbf{v})] (1 - i\nu_q w)}, \end{aligned} \quad (4.15)$$

$$\begin{aligned} \langle \rho_i \rangle &= iG_i \langle L \rangle, \quad \langle L \rangle = \frac{w}{1 - i\nu_q w}, \\ w &= \int \frac{W(\mathbf{v}) d\mathbf{v}}{\Gamma - i(\Omega - \mathbf{k}\mathbf{v})}. \end{aligned} \quad (4.16)$$

Работа поля $P(\Omega)$ в единицу времени (или поглощаемая мощность) дается общей формулой [3, 4]

$$P(\Omega) = -2h\omega \operatorname{Re} (i \langle \rho_i \rangle G_i^*). \quad (4.17)$$

В линейном приближении (4.16) получаем

$$P(\Omega) = 2h\omega |G_i|^2 \operatorname{Re} \langle L \rangle. \quad (4.18)$$

Следовательно, величина $\operatorname{Re} \langle L \rangle$ описывает зависимость мощности от частоты или контур спектральной линии поглощения. Формула (4.16) определяет так называемый контур Раутиана—Собельмана [12]. Если бы частота прихода обладала вещественной частью, выражение (4.16) содержало бы (в пределе малого доплеровского уширения) дикковское сужение линии. Поскольку в нашем случае частота прихода чисто мнимая, контур (4.16) уширяется по мере увеличения Γ и испытывает смещение. В предельных случаях из формулы (4.16) следуют приближенные выражения:

$$\begin{aligned} \langle L \rangle &\approx \frac{\pi^{1/2}}{kv_T} \left[1 - \frac{2\Gamma}{\pi^{1/2} kv_T} - \frac{(\Omega + 2\nu_q)^2}{(kv_T)^2} \right], \\ \Gamma, |\Omega| &\ll kv_T, \end{aligned} \quad (4.19)$$

$$\begin{aligned} \langle L \rangle &\approx \left[\Gamma - i(\Omega + \nu_q) + \frac{(kv_T)^2/2}{\Gamma - i\Omega} \right]^{-1}, \\ \Gamma &\gg kv_T. \end{aligned} \quad (4.20)$$

Из приведенных выражений видно, что при малых частотах столкновений максимум линии находится в точке $\Omega_1 = -2\nu_q$. Смещение происходит в коротковолновую сторону, так как $\nu_q < 0$. Значение $\operatorname{Re} \langle L \rangle$ в максимуме уменьшается с ростом Γ . Такое уменьшение происходит монотонно, и при $\Gamma \gg kv_T$ контур становится лоренцевым с максимумом в точке $\Omega_2 = -\nu_q$. Контур асимметричен в соответствии с общими модельными выводами [12]. Перечисленные свойства контура иллюстрирует рис. 2. Соотношение между Γ и ν_q в расчетах было выбрано согласно данным (4.9), т. е.

$$\Gamma/\nu_q = -3.$$

Таким образом, при резонансном диполь-дипольном взаимодействии одинаковых сталкивающихся атомов дикковское сужение не происходит. Этот

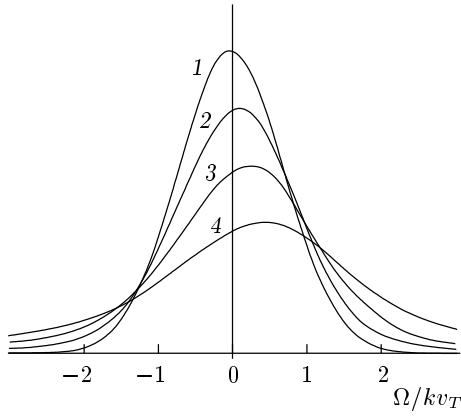


Рис. 2. График функции $\pi^{-1/2} k v_T \text{Re}(L)$ (контур линии). Кривые 1, 2, 3 и 4 отвечают значениям $\Gamma/k v_T = 0, 0.2, 0.5$ и 1.0

факт обусловлен отсутствием члена прихода $S^{(2)}(m_1 m \mathbf{q})$ (см. формулу (3.6)). Поскольку в члене ухода $S^{(1)}(m_1 m \mathbf{q})$ фигурируют амплитуды рассеяния вперед, сделанный вывод останется в силе и при учете изменения скорости при столкновении. Мнимость частоты прихода (в терминах модели сильных столкновений) связана, очевидно, со сдвигом фазы на $\pi/2$ в обменном канале по сравнению с безобменным, что характерно для резонансных процессов.

Квадратичное приближение находится из уравнений (4.3)–(4.5), если в них ρ_i и $\langle \rho_i \rangle$ принять в первом приближении (4.14) и (4.15), а ρ и $\langle \rho \rangle$ — в нулевом (4.12). В этом приближении фигурирует поляризационный тензор $G_i G_j^*$, который целесообразно разложить на неприводимые тензоры:

$$\begin{aligned} G_i G_j^* &= \frac{1}{3} \delta_{ij} J + i \varepsilon_{ijl} J_l + J_{ij}, \\ J_{ij} &= J_{ji}, \quad J_{ii} = 0, \\ J &= G_k G_k^*, \quad J_i = \frac{i}{2} \varepsilon_{ilk} G_k G_l^*, \\ J_{ij} &= \frac{1}{2} \left(G_i G_j^* + G_j G_i^* - \frac{2}{3} \delta_{ij} G_k G_k^* \right). \end{aligned} \tag{4.21}$$

Уравнения для квадратичных по полю величин имеют вид

$$\begin{aligned} (\gamma_0 + \nu_0) \eta &= \tilde{\nu}_0 W(\mathbf{v}) \langle \eta \rangle - 2J \text{Re} [L (i \bar{\nu}_0 \langle L^* \rangle - 1)], \\ (\gamma_0 + \nu_1) \eta_i &= \tilde{\nu}_1 W(\mathbf{v}) \langle \eta_i \rangle - 2J_i \text{Re} [L (i \bar{\nu}_1 \langle L^* \rangle - 1)], \\ (\gamma_0 + \nu_2) \eta_{ij} &= \tilde{\nu}_2 W(\mathbf{v}) \langle \eta_{ij} \rangle - 2J_{ij} \text{Re} [L (i \bar{\nu}_2 \langle L^* \rangle - 1)]. \end{aligned} \tag{4.22}$$

Интегрированием по \mathbf{v} из уравнений (4.22) находят $\langle \eta \rangle$, $\langle \eta_i \rangle$ и $\langle \eta_{ij} \rangle$. Подставляя получающиеся выражения в (4.22), можно найти

$$\begin{aligned} \eta(\mathbf{v}) &= \frac{2J}{\gamma_0 + \nu_0} \left\{ \frac{\nu_0}{\gamma_0} W(\mathbf{v}) \text{Re} \langle L \rangle + \text{Re} L - \text{Re} (i \bar{\nu}_0 \langle L^* \rangle L) \right\}, \\ \eta_i(\mathbf{v}) &= \frac{2J_i}{\gamma_0 + \nu_1} \left\{ \frac{\tilde{\nu}_1 W(\mathbf{v})}{\gamma_0 + \nu_1 - \tilde{\nu}_1} \text{Re} \langle L \rangle + \text{Re} L - \text{Re} (i \bar{\nu}_1 \langle L^* \rangle L) \right\}, \\ \eta_{ij}(\mathbf{v}) &= \frac{2J_{ij}}{\gamma_0 + \nu_2} \left\{ \frac{\tilde{\nu}_2 W(\mathbf{v})}{\gamma_0 + \nu_2 - \tilde{\nu}_2} \text{Re} \langle L \rangle + \text{Re} L - \text{Re} (i \bar{\nu}_2 \langle L^* \rangle L) \right\}. \end{aligned} \tag{4.23}$$

В данном приближении η , η_i и η_{ij} пропорциональны соответственно J , J_i и J_{ij} и состоят из одинаковых элементов структуры, различаются только веса, с которыми эти элементы входят в выражения (4.23). Член $\text{Re} L$ определяет структуру Беннета приблизительно лоренцевой формы с характерной шириной Γ и расположенной вблизи скорости $\mathbf{k} \cdot \mathbf{v} = \Omega$. Первые члены в фигурных скобках описывают так называемую столкновительную полосу однородного насыщения с максвелловой формой, ее частотная зависимость копирует контур линии (4.16) первого приближения. Эти два элемента хорошо известны [3, 4]. Новые элементы, обусловленные поляризационными переходами, описываются слагаемыми $\text{Re}(i \bar{\nu}_\kappa \langle L^* \rangle L)$. В соответствии с общими выводами (соотношения (4.12)), они не изменяют интегральных по скоростям величин и влияют только на распределения по скоростям. Выпишем явные выражения:

$$\begin{aligned} \text{Re} L &= \frac{W(\mathbf{v})}{|1 - i \nu_q w|^2} \times \\ &\times \frac{(1 + \nu_q w'') \Gamma - (\Omega - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v}) w' \nu_q}{\Gamma^2 + (\Omega - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v})^2}, \end{aligned} \tag{4.24}$$

$$\begin{aligned} \bar{\nu}_\kappa \text{Re} (i L \langle L^* \rangle) &= \frac{W(\mathbf{v})}{|1 - i \nu_q w|^2} \times \\ &\times \frac{w'' \Gamma - (\Omega - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v}) w' \nu_q}{\Gamma^2 + (\Omega - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v})^2} \bar{\nu}_\kappa, \end{aligned} \tag{4.25}$$

$$\begin{aligned} w(\Omega) &= w'(\Omega) + i w''(\Omega), \quad w'(-\Omega) = w'(\Omega), \\ w''(-\Omega) &= -w''(\Omega). \end{aligned} \tag{4.26}$$

Можно видеть, что в выражении (4.25) основным является слагаемое, антисимметрично зависящее от $\Omega - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v}$. Такой же антисимметричный член присутствует и в (4.24). Отношение антисимметричных слагаемых в (4.25) и (4.24) равно $\bar{\nu}_\kappa/\nu_q$, что, согласно (4.9), составляет $-0.41, 0.50$ и -0.050 соответственно для $\kappa = 0, 1$ и 2 .

Таким образом, поляризационные переходы и мнимость частоты прихода ($i\nu_q$) образуют антисимметричную составляющую в структуре Беннета, причем для разных неприводимых тензоров ее вклад различен из-за вариации знаков и абсолютных величин $\bar{\nu}_\kappa$.

Для вычисления $P(\Omega)$ с точностью до $|G|^4$, т. е. для определения первых нелинейных поправок, нужно найти $\rho_i(\mathbf{v})$ в кубическом приближении. Мы не будем этого делать: как и в других родственных явлениях нелинейной спектроскопии, $\langle \rho_i \rangle$ не будет содержать резких нелинейных резонансов, несмотря на наличие структуры Беннета. Для выявления последней следует применить один из вариантов метода пробного поля, которое «зондирует» распределение по скоростям, созданное сильным полем. Рассмотрим простейший метод встречной пробной волны той же частоты ω [7]. В этом случае нелинейные интерференционные эффекты не существенны и следует принимать во внимание только изменение распределений по скоростям [3, 4]. Уравнение для недиагонального элемента $\rho_{i\mu}$, индуцированного встречной волной (волновой вектор $-\mathbf{k}$, амплитуда $E_{i\mu}$), имеет вид

$$\begin{aligned} & [\Gamma - i(\Omega + \mathbf{k} \cdot \mathbf{v})] \rho_{i\mu} - i\nu_q W(\mathbf{v}) \langle \rho_{i\mu} \rangle - iG_{i\mu} W(\mathbf{v}) = \\ & = -2i\nu_q \eta(\mathbf{v}) \langle \rho_{i\mu} \rangle - i\bar{\nu} [\eta(\mathbf{v}) \delta_{ij} - \rho_{ij}(\mathbf{v})] \langle \rho_{j\mu} \rangle - \\ & - i[G_{i\mu} \eta(\mathbf{v}) + \rho_{ij}(\mathbf{v}) G_{j\mu}], \quad G_{i\mu} = \frac{dE_{i\mu}}{2h}. \end{aligned} \quad (4.27)$$

В правой части собраны слагаемые, в которых η и ρ_{ij} следует выразить с помощью формул (4.23) квадратичного приближения, а $\langle \rho_{i\mu} \rangle$ — линейного. При вычислении работы пробного поля

$$P_\mu(\Omega) = -2h\omega \operatorname{Re} (i \langle \rho_{i\mu} G_{i\mu}^* \rangle) \quad (4.28)$$

возникнет поляризационный тензор пробного поля $G_{i\mu} G_{j\mu}^*$, который разложим на неприводимые тензоры:

$$G_{i\mu} G_{j\mu}^* = \frac{1}{3} \delta_{ij} J_\mu + i \varepsilon_{ijl} J_{l\mu} + J_{ij\mu}. \quad (4.29)$$

После несложных преобразований можно прийти к соотношениям

$$\begin{aligned} \frac{P_\mu(\Omega)}{2h\omega} &= \operatorname{Re} \langle L \rangle J_\mu - \operatorname{Re} (1 + i\nu_q w)^{-1} \times \\ &\times \left\{ \frac{4}{3} \left[1 - i \left(\nu_q + \frac{\tilde{\nu}}{2} \right) \langle L \rangle \right] \times \right. \\ &\times (a_0 + b_0 + c_0) \langle L \rangle J J_\mu + (1 + i\bar{\nu} \langle L \rangle) \times \\ &\left. \times \left[(a_1 + b_1 + c_1) 2J_l J_{l\mu} + (a_2 + b_2 + c_2) J_{ij} J_{ij\mu} \right] \right\}, \end{aligned} \quad (4.30)$$

$$\begin{aligned} a_\kappa &= \frac{2}{\gamma_0 + \nu_\kappa} \frac{\tilde{\nu}_\kappa a(\Omega)}{\gamma_0 + \nu_\kappa - \tilde{\nu}_\kappa}, \\ b_\kappa &= \frac{2b(\Omega)}{\gamma_0 + \nu_\kappa}, \quad c_\kappa = -\frac{2\bar{\nu}_\kappa c(\Omega)}{\gamma_0 + \nu_\kappa}, \\ a(\Omega) &= \langle L \rangle w, \quad b(\Omega) = \left\langle \frac{\operatorname{Re} L}{\Gamma - i(\Omega + \mathbf{k} \cdot \mathbf{v})} \right\rangle, \\ c(\Omega) &= \left\langle \frac{\operatorname{Re} (i \langle L^* \rangle L)}{\Gamma - i(\Omega + \mathbf{k} \cdot \mathbf{v})} \right\rangle. \end{aligned} \quad (4.31)$$

Согласно (4.9), величины $\gamma_0 + \nu_\kappa$ варьируют не сильно, их отличие от среднего значения не превышает 20%. Частоты $\tilde{\nu}_\kappa$ отличаются по знаку, а по абсолютной величине — на порядок. То же относится и к совокупности частот $\bar{\nu}_\kappa$. Величины a_κ, b_κ и c_κ обладают спектральными контурами, не зависящими от κ . Слагаемые a_κ описывают бесструктурную полосу с доплеровской шириной, почти симметричную, если $\Gamma \ll kv_T$. Функции $b(\Omega)$ и $c(\Omega)$ можно представить следующим образом:

$$b(\Omega) = \left[\frac{\langle L \rangle}{\Gamma - i\Omega} + (1 + i\nu_q w)^{-1} \frac{w''}{\Omega} \right], \quad (4.32)$$

$$c(\Omega) = \frac{i}{2} |1 - i\nu_q w|^{-2} \left(\frac{|w|^2}{\Gamma - i\Omega} - \frac{w w''}{\Omega} \right). \quad (4.33)$$

При $\Gamma \ll kv_T$ основной вклад в нелинейную составляющую $P_\mu(\Omega)$ дают $\operatorname{Re} b(\Omega)$ и $\operatorname{Re} c(\Omega)$. Из выражений (4.32) и (4.33) видно, что $b(\Omega)$ будет определять симметричную часть нелинейного резонанса вида $\Gamma/(\Gamma^2 + \Omega^2)$, а $c(\Omega)$ — антисимметричную $\Omega/(\Gamma^2 + \Omega^2)$. Отношение $|c(\Omega)/b(\Omega)|$ по порядку величины составляет $\bar{\nu}_\kappa/kv_T$.

Обратимся к поляризационным свойствам нелинейных резонансов. Выберем за ось z направление волнового вектора. Рассмотрим основные, обычно употребляемые линейные и круговые поляризации и введем символические обозначения: линейные поляризации вдоль осей x и y обозначим соответственно \uparrow и \rightarrow , правую и левую круговые поляризации обозначим «+» и «-». Примем $J J_\mu$ за единицу. Численные значения $J_l J_{l\mu}$ и $J_{ij} J_{ij\mu}$ для комбинаций указанных поляризаций в сильной и встречной волнах приведены в таблице. Комбинируя сигналы, отвечающие различным столбцам таблицы, можно выделить

	($\uparrow\uparrow$)	($\uparrow\rightarrow$)	($\uparrow+$)	($++$)	($+ -$)
JJ_μ	1	1	1	1	1
$J_l J_\mu$	0	0	0	1/4	-1/4
$J_{ij} J_{ji\mu}$	2/3	-1/3	1/6	1/6	1/6

вклады различных неприводимых тензоров. Например, сумма сигналов ($\uparrow\uparrow$) + 2($\uparrow\rightarrow$) будет содержать только скалярную часть, разность ($++$) - ($+ -$) будет пропорциональна только ориентации, разность ($\uparrow\uparrow$) - ($\uparrow\rightarrow$) - только выстраиванию и т. п.

Выше рассмотрен простейший нелинейный резонанс встречной пробной волны. Аналогичные асимметричные элементы нелинейных резонансов существуют и в спектре поглощения пробного поля, резонансного смежным переходам (например, $m_1 - l$, $m - g$).

5. ОБСУЖДЕНИЕ

Одна из основных идей нелинейной спектроскопии насыщения состоит в описании релаксации и нелинейных эффектов с помощью аддитивных, независимых членов в квантовом кинетическом уравнении — полевого, динамического члена $i[V, \rho]$ (V — гамильтониан взаимодействия атома и поля) и интеграла столкновений S , в котором термостат предполагается равновесным [3, 4, 13]. На базе этой идеи решено огромное число конкретных задач и интерпретирована масса явлений, она приобрела черты самоочевидной, привычной истины. Однако эта важная идея оказалась несостоятельной в случае самоуширения или, более общо, при взаимодействии буферного газа («термостата») с достаточно мощным излучением. В разд. 2–4 выявлены три типа конкретных нелинейных эффектов, связанных с интегралом столкновений. Прежде всего, это очевидная зависимость релаксационных характеристик от интенсивности, частоты и поляризации поля. Вторая причина более тонкая: специфические поляризационные переходы, не существующие в отсутствие поля. Эти переходы имеют интерференционную природу, так как обусловлены интерференцией обменного и безобменного каналов рассеяния. Они необычны и в кинетическом отношении, поскольку число поляризационных переходов в единицу времени пропорционально произведению не концентраций сталкивающихся частиц, а оптических когерентностей, индуцированных полем. Поляризационные переходы, в силу своего интерференционного происхождения, создают знакопеременные элементы в тонкой структуре

распределения по скоростям с нулевым интегралом и, соответственно этому, асимметричные элементы в нелинейных резонансах пробного поля.

Третий механизм связи интеграла столкновений с интенсивным излучением состоит в пространственной неоднородности буферного и изучаемого газа, индуцированной полем. Этот фактор, аналогично динамическому взаимодействию атома и поля, порождает своеобразный эффект отдачи, который проявляется и через амплитуды рассеяния, и через матрицы плотности сталкивающихся атомов.

Мне приятно выразить благодарность А. П. Кольченко, П. Л. Чаповскому и А. М. Шалагину за обсуждение вопросов, разобранных в статье.

Работа выполнена при поддержке Государственной научно-технической программы «Фундаментальная спектроскопия» (грант № 08.02.31) и Федеральной целевой программы «Интеграция» (грант № 274).

ЛИТЕРАТУРА

1. А. П. Казанцев, ЖЭТФ **51**, 1751 (1966).
2. С. Г. Раутиан, ЖЭТФ **103**, 785 (1993).
3. С. Г. Раутиан, Г. И. Смирнов, А. М. Шалагин, *Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул*, Наука, Новосибирск (1979).
4. S. G. Rautian and A. M. Shalagin, *Kinetic Problems of Nonlinear Spectroscopy*, North-Holland, Amsterdam-Oxford (1991).
5. Р. Ньютон, *Теория рассеяния волн и частиц*, Мир, Москва (1969).
6. А. П. Кольченко, С. Г. Раутиан, Р. И. Соколовский, ЖЭТФ **55**, 1864 (1968).
7. V. S. Letokhov and V. P. Chebotaeu, *Nonlinear Laser Spectroscopy*, Springer, Berlin (1977).
8. J. L. Hall, C. J. Borde, and J. Jehara, Phys. Rev. Lett. **37**, 1339 (1976).
9. Д. А. Варшалович, А. Н. Москалев, В. К. Херсонский, *Квантовая теория углового момента*, Наука, Ленинград (1975).
10. Ю. А. Вдовин, В. М. Галицкий, ЖЭТФ **52**, 1345 (1967).
11. В. К. Мацкевич, И. Е. Евсеев, В. М. Ермаченко, Опт. и спектр. **45**, 17 (1978).
12. С. Г. Раутиан, И. И. Собельман, УФН **90**, 209 (1966).
13. С. Г. Раутиан, ЖЭТФ **51**, 1176 (1966).