

О ВОЗМОЖНОСТИ ПРЕЦИЗИОННОГО ТЕСТИРОВАНИЯ МЕЖАТОМНЫХ ПОТЕНЦИАЛОВ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ С ПОМОЩЬЮ ЭФФЕКТА АНОМАЛЬНОГО СВЕТОИНДУЦИРОВАННОГО ДРЕЙФА

А. И. Пархоменко*, А. М. Шалагин**

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

Новосибирский государственный университет
630090, Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 27 февраля 2018 г.

На основе четырех известных неэмпирических (вычисленных *ab initio*) межатомных потенциалов взаимодействия для системы сталкивающихся частиц Li–Ne теоретически исследованы спектральные особенности скорости светоиндуцированного дрейфа (СИД) атомов лития, находящихся в буферном газе неоне. Расчеты с использованием каждого из четырех потенциалов взаимодействия предсказывают сильную зависимость от температуры спектральной формы сигнала СИД атомов Li в атмосфере Ne в различных интервалах температур. Полученные результаты дают возможность высокоточного тестирования межатомных потенциалов взаимодействия в экспериментах по аномальному СИД.

DOI: 10.1134/S0044451018080084

1. ВВЕДЕНИЕ

Суть эффекта светоиндуцированного дрейфа (СИД) газов состоит в возникновении относительного движения (дрейфа) двух компонентов газовой смеси при резонансном взаимодействии излучения с одним из компонентов смеси [1, 2]. Эффект СИД обусловлен селективным по скоростям возбуждением резонансно поглощающих излучение частиц (вследствие эффекта Доплера) и различием транспортных характеристик возбужденных и невозбужденных резонансных частиц при их столкновениях с буферными частицами. Дрейфовое движение резонансных частиц может осуществляться как в направлении распространения излучения, так и в противоположном направлении.

Для явления СИД характерна универсальность в том смысле, что оно осуществляется в условиях, типичных для задач нелинейной оптики и спектроскопии, и присуще широкому классу объектов: ато-

мам, молекулам, ионам, электронам проводимости в твердых телах. Эффект СИД экспериментально зарегистрирован почти для двух десятков различных объектов: атомов (Li, Na, K, Rb, Ne, Ba) в различных буферных газах, молекул (CH₃F, CH₃Br, C₂H₄, NH₃, SF₆, CH₃OH, H₂O, HF) в различных буферных газах, электронов в полупроводнике InSb (см., например, [3–9] и цитированную там литературу). Экспериментально показано, что атомы под действием СИД могут дрейфовать со скоростью порядка нескольких десятков метров в секунду [10].

Важной характеристикой эффекта СИД является зависимость скорости дрейфа от частоты излучения (форма линии СИД). По наблюдаемой в экспериментах форме линии СИД исторически сложилась классификация эффекта на «нормальный» и «аномальный» СИД.

Нормальный эффект СИД хорошо описывается теорией СИД с независимыми от скорости транспортными частотами столкновений. Скорость дрейфа при нормальном эффекте СИД пропорциональна относительной разности $(\nu_m^{tr} - \nu_n^{tr})/\nu_n^{tr}$ средних транспортных частот столкновений резонансных частиц в возбужденном (m) и основном (n) состояниях с буферными частицами. Средняя транс-

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

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

портная частота ν_i^{tr} связана простой формулой с коэффициентом диффузии D_i частиц в состоянии $i = n, m$ [3]: $\nu_i^{tr} = v_T^2 / (2D_i)$, где v_T — наиболее вероятная скорость поглощающих частиц. При нормальном эффекте СИД форма линии СИД имеет наиболее простой вид и полностью определяется спектром поглощения дрейфующих частиц. В частности, при возбуждении излучением частиц на изолированном переходе (двухуровневые частицы) линия нормального СИД имеет характерную дисперсионно-подобную (тильдообразную) форму [3–7].

Аномальный СИД имеет гораздо более сложную форму линии. Аномальный СИД обусловлен зависимостью транспортных частот столкновений от скорости v резонансных частиц, причем аномальность может возникать только в том случае, когда разность транспортных частот столкновений $\nu_m(v) - \nu_n(v)$ на комбинирующих (затронутых излучением) уровнях m, n изменяет свой знак как функция v . Изучению аномального СИД посвящено большое количество экспериментальных [8, 9, 11–17] и теоретических [8, 14, 16, 18–27] работ. Поскольку транспортные частоты столкновений $\nu_m(v), \nu_n(v)$ полностью определяются потенциалами взаимодействий резонансных и буферных частиц, форма линии аномального СИД сильно чувствительна к различию потенциалов взаимодействия резонансных атомов в основном и возбужденном состояниях с буферными частицами. Это дает возможность высокоточного тестирования в экспериментах по СИД межатомных потенциалов взаимодействия, использованных для расчетов спектральной формы сигнала аномального СИД, и, следовательно, возможность сравнительно простого экспериментального тестирования точности различных теоретических моделей потенциалов взаимодействия.

В настоящей работе на основе четырех различных неэмпирических (вычисленных *ab initio*) межатомных потенциалов взаимодействия для пар сталкивающихся частиц Li–Ne [28–31] теоретически предсказан и рассчитан аномальный СИД атомов лития, находящихся в буферном газе неоне. Расчеты с использованием каждого из четырех потенциалов взаимодействия предсказывают возникновение аномального СИД атомов Li в атмосфере Ne при различных температурах и в различных интервалах температур. Проведенные расчеты аномального СИД атомов Li подтверждают высокую чувствительность формы линии аномального СИД к различию потенциалов взаимодействия, используемым для расчетов сигнала аномального СИД.

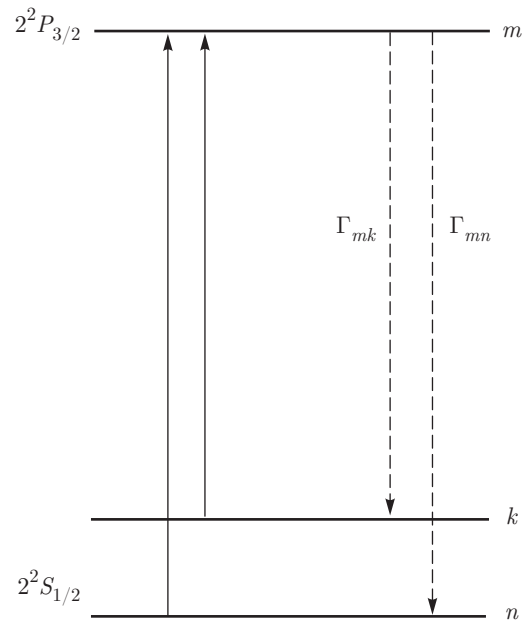


Рис. 1. Схема энергетических уровней. Сплошными стрелками обозначены переходы под действием излучения, штриховыми — спонтанные радиационные переходы

2. СКОРОСТЬ ДРЕЙФА

Литий имеет два стабильных изотопа: ${}^7\text{Li}$ (распространенность 92.5%) и ${}^6\text{Li}$ (распространенность 7.5%) [32]. Изотопический сдвиг частот спектральных линий основного изотопа ${}^7\text{Li}$ относительно частот линий изотопа ${}^6\text{Li}$ такой, что при настройке частоты излучения лазера на D_2 -линию ${}^7\text{Li}$ с излучением взаимодействует только один основной изотоп ${}^7\text{Li}$. Имея в виду эту ситуацию, далее мы будем рассматривать СИД атомов ${}^7\text{Li}$ в случае возбуждения D_2 -перехода атомов ${}^7\text{Li}$.

Для расчета скорости светоиндуцированного дрейфа атомов ${}^7\text{Li}$ вполне можно использовать трехуровневую модель поглощающих частиц (рис. 1). Здесь уровни n, k — компоненты сверхтонкой структуры основного состояния. Уровень m соответствует возбужденному электронному состоянию. С уровня m частица радиационно релаксирует на уровни n и k с константами соответственно Γ_{mn} и Γ_{mk} . Эта схема уровней хорошо отражает реальную структуру основного и первого возбужденного состояний атомов ${}^7\text{Li}$. Действительно, основной уровень $2^2S_{1/2}$ этих атомов расщеплен на две сверхтонкие компоненты. Для атомов ${}^7\text{Li}$ сверхтонкое расщепление основного состояния $\omega_{kn} = 5.049 \cdot 10^9 \text{ c}^{-1}$ [32] сравнимо с доплеровской шириной резонансной линии, и поэтому основное

состояние моделируется двумя уровнями n и k . Для атомов ${}^7\text{Li}$ уровень n характеризуется статистическим весом $g_n = 3$ (полный момент атома $F = 1$), а уровень k — статистическим весом $g_k = 5$ ($F = 2$). Уровень m (со статистическим весом g_m) моделирует группу уровней, представляющих собой компоненты сверхтонкой структуры возбужденного состояния $2^2P_{3/2}$. Такое моделирование группы уровней одним уровнем возможно потому, что для атомов ${}^7\text{Li}$ сверхтонкое расщепление в этом возбужденном состоянии мало по сравнению с доплеровской шириной резонансной линии. Для атомов ${}^7\text{Li}$ статистический вес $g_m = 16$ при возбуждении D_2 -перехода (излучением затрагивается уровень ${}^2P_{3/2}$ с четырьмя сверхтонкими компонентами $F = 0, F = 1, F = 2, F = 3$).

Итак, рассмотрим газ трехуровневых поглощающих частиц (схема уровней поглощающих частиц показана на рис. 1), находящихся в смеси с буферным газом. Столкновениями между поглощающими частицами пренебрежем, полагая концентрацию буферного газа N_b много большей концентрации поглощающего газа N . Взаимодействие поглощающих частиц газа с резонансным излучением в стационарных и пространственно-однородных условиях описывается следующими уравнениями для распределений населенностей по скоростям $\rho_i(\mathbf{v})$ на уровнях $i = n, k, m$:

$$\begin{aligned} S_m(\mathbf{v}) + N[P_n(\mathbf{v}) + P_k(\mathbf{v})] - \Gamma_m \rho_m(\mathbf{v}) &= 0, \\ S_n(\mathbf{v}) - NP_n(\mathbf{v}) + \Gamma_{mn} \rho_m(\mathbf{v}) &= 0, \\ S_k(\mathbf{v}) - NP_k(\mathbf{v}) + \Gamma_{mk} \rho_m(\mathbf{v}) &= 0, \end{aligned} \quad (1)$$

где $N = N_n + N_k + N_m$ — полная концентрация поглощающих частиц, $N_i = \int \rho_i(\mathbf{v}) d\mathbf{v}$ — концентрация поглощающих частиц на уровне i , $S_i(\mathbf{v})$ — интегралы столкновений, $P_n(\mathbf{v})$ и $P_k(\mathbf{v})$ — вероятности поглощения излучения в единицу времени на переходах $n \rightarrow m$ и $k \rightarrow m$ в расчете на один поглощающий атом с заданной скоростью \mathbf{v} . Для рассматриваемой трехуровневой модели частиц скорости Γ_{mn} и Γ_{mk} спонтанного распада уровня m по каналам $m \rightarrow n$ и $m \rightarrow k$ подчиняются следующим соотношениям [33]:

$$\Gamma_{mn} + \Gamma_{mk} = \Gamma_m, \quad \frac{\Gamma_{mn}}{\Gamma_{mk}} = \frac{g_n}{g_k}, \quad (2)$$

где Γ_m — полная скорость спонтанного распада возбужденного уровня m .

Найдем вероятности поглощения излучения $P_n(\mathbf{v})$ и $P_k(\mathbf{v})$ в уравнениях (1). Для простоты ограничимся условием слабой интенсивности излучения. При этом доля частиц в возбужденном состоянии

m мала ($N_m \ll N$), а распределение населенностей по скоростям на сверхтонких компонентах n, k в основном состоянии близко к максвелловскому:

$$\rho_i(\mathbf{v}) = N_i W(\mathbf{v}), \quad i = n, k, \quad (3)$$

где $W(\mathbf{v})$ — распределение Максвелла. В этих условиях при взаимодействии поглощающих частиц с монохроматическим излучением вероятность поглощения излучения $P_i(\mathbf{v})$ в уравнениях (1) определяется следующим известным выражением:

$$\begin{aligned} P_i(\mathbf{v}) &= \frac{BI}{\pi} \frac{N_i}{N} Y_i(\mathbf{v}) W(\mathbf{v}), \\ B &= \frac{\lambda^2 \Gamma_m}{4\hbar\omega} \frac{g_m}{g_n + g_k}, \\ Y_i(\mathbf{v}) &= \frac{\Gamma(v)}{\Gamma^2(v) + (\Omega_i - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v})^2}, \\ \Gamma(v) &= \frac{\Gamma_m}{2} + \gamma(v), \\ \Omega_i &= \omega - \omega_{mi}, \quad i = n, k, \end{aligned} \quad (4)$$

где B — второй коэффициент Эйнштейна для поглощения [33]; ω , λ , \mathbf{k} и I — частота, длина волны, волновой вектор и интенсивность монохроматического излучения; ω_{mi} — частота перехода $m \rightarrow i$; $\Gamma(v)$ — однородная полуширина линии поглощения, которая является суммой спонтанной, $\Gamma_m/2$, и столкновительной, $\gamma(v)$, полуширин.

Для атомов щелочных металлов, находящихся в атмосфере инертных буферных газов, сечения столкновительных переходов $n \rightarrow k$, $k \rightarrow n$ между компонентами сверхтонкой структуры основного состояния очень малы — на 5–10 порядков меньше газокинетических сечений ([34], с. 220). Имея в виду эту ситуацию, далее будем рассматривать случай отсутствия столкновительного обмена между сверхтонкими компонентами n и k , т. е. будем полагать, что интегралы столкновений $S_n(\mathbf{v})$ и $S_k(\mathbf{v})$ в (1) обусловлены только упругим рассеянием. Тем самым выполняются условия для проявления эффекта оптической накачки уровней сверхтонкой структуры основного состояния. При упругом рассеянии интеграл столкновений должен обеспечивать сохранение числа частиц на уровне i :

$$\int S_i(\mathbf{v}) d\mathbf{v} = 0, \quad i = n, k, m. \quad (5)$$

В формулу (4) для вероятности поглощения $P_i(\mathbf{v})$ входит N_i — населенность i -го подуровня сверхтонкой структуры основного состояния. Населенности N_i находятся из двух последних уравнений в (1), проинтегрированных по скоростям. Из этих

уравнений, используя приближенное условие нормировки $N_n + N_k \approx N$ (здесь учтено принятое нами приближение $N_m \ll N$) и соотношения (2), (4), (5), получим следующие выражения для относительных населенностей подуровней сверхтонкой структуры основного состояния:

$$\begin{aligned} \frac{N_n}{N} &= \frac{g_n \langle Y_k \rangle}{g_n \langle Y_k \rangle + g_k \langle Y_n \rangle}, \\ \frac{N_k}{N} &= \frac{g_k \langle Y_n \rangle}{g_n \langle Y_k \rangle + g_k \langle Y_n \rangle}, \\ \langle Y_i \rangle &= \int Y_i(\mathbf{v}) W(\mathbf{v}) d\mathbf{v}, \quad i = n, k. \end{aligned} \quad (6)$$

Для интегралов столкновений в уравнениях (1) будем использовать модель изотропного по скоростям «прихода» [24, 35]:

$$S_i(\mathbf{v}) = -\nu_i(v) \rho_i(\mathbf{v}) + S_i^{(2)}(v), \quad i = n, k, m, \quad (7)$$

где член «прихода» $S_i^{(2)}(v)$ — функция модуля скорости $v = |\mathbf{v}|$. Величина $\nu_i(v)$ в (7) является транспортной частотой столкновений [22, 35]. Столкновительная модель (7) учитывает зависимость частоты столкновений от скорости и в то же время позволяет получить аналитическое решение рассматриваемой задачи при любых соотношениях масс активных и буферных частиц.

Связь транспортной частоты столкновений $\nu_i(v)$ в (7) с характеристиками элементарного акта рассеяния дается известной формулой [36]

$$\nu_i(v) = \frac{\mu}{M} \frac{N_b \bar{v}_b}{\sqrt{\pi} v^3} \int_0^\infty u^2 \exp\left(-\frac{u^2 + v^2}{\bar{v}_b^2}\right) \times F(uv) \sigma_i(u) du, \quad (8)$$

где

$$\begin{aligned} F(uv) &= \frac{2uv}{\bar{v}_b^2} \operatorname{ch}\left(\frac{2uv}{\bar{v}_b^2}\right) - \operatorname{sh}\left(\frac{2uv}{\bar{v}_b^2}\right), \\ \mu &= \frac{MM_b}{M + M_b}, \quad \bar{v}_b = \sqrt{\frac{2k_B T}{M_b}}, \end{aligned} \quad (9)$$

N_b и M_b — концентрация и масса буферных частиц, M — масса поглощающих излучение частиц, k_B — постоянная Больцмана, T — температура, u — относительная скорость резонансной и буферной частиц до столкновения, $\sigma_i(u)$ — транспортное сечение рассеяния поглощающей частицы в состоянии i на буферной частице. Сечения $\sigma_i(u)$ вычисляются с использованием потенциалов взаимодействия поглощающих и буферных частиц.

Поглощающие атомы Li на разных подуровнях сверхтонкой структуры основного состояния имеют практически одинаковые потенциалы взаимодействия в столкновениях с атомами буферного газа. Поэтому с большой точностью можно считать, что транспортные частоты столкновений на сверхтонких компонентах n и k равны между собой [22]:

$$\nu_k(v) = \nu_n(v). \quad (10)$$

Скорость светоиндуцированного дрейфа поглощающих частиц определяется выражением

$$\mathbf{u}_L = \frac{1}{N} \int \mathbf{v} [\rho_n(\mathbf{v}) + \rho_k(\mathbf{v}) + \rho_m(\mathbf{v})] d\mathbf{v}. \quad (11)$$

Из структуры уравнений (1) и выражения (4) с учетом конкретного вида интеграла столкновений (7) следует, что распределения населенностей по скоростям $\rho_n(\mathbf{v})$, $\rho_k(\mathbf{v})$ и $\rho_m(\mathbf{v})$ представляют собой сумму анизотропных частей $\delta\rho_n(\mathbf{v})$, $\delta\rho_k(\mathbf{v})$ и $\delta\rho_m(\mathbf{v})$, непосредственно индуцированных излучением (функции $P_n(\mathbf{v})$ и $P_k(\mathbf{v})$), и изотропных частей, порожденных членом «прихода» интеграла столкновений (7). Очевидно, что в скорость дрейфа (11) дают вклад только анизотропные части распределения населенностей по скоростям, для которых из уравнений (1) с учетом (7), (10) получаем следующие выражения:

$$\begin{aligned} \delta\rho_m(\mathbf{v}) &= N \frac{P_n(\mathbf{v}) + P_k(\mathbf{v})}{\Gamma_m + \nu_m(v)}, \\ \delta\rho_n(\mathbf{v}) + \delta\rho_k(\mathbf{v}) &= -N \frac{\nu_m(v) [P_n(\mathbf{v}) + P_k(\mathbf{v})]}{\nu_n(v) [\Gamma_m + \nu_m(v)]}. \end{aligned} \quad (12)$$

После подстановки формул (12) в (11) для скорости дрейфа получаем выражение

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_L &= \int \tau(v) \mathbf{v} [P_n(\mathbf{v}) + P_k(\mathbf{v})] d\mathbf{v}, \\ \tau(v) &= \frac{\nu_n(v) - \nu_m(v)}{\nu_n(v) [\Gamma_m + \nu_m(v)]}. \end{aligned} \quad (13)$$

Как отмечалось во Введении, аномальный СИД может возникнуть в том случае, когда транспортные частоты столкновений $\nu_m(v)$ и $\nu_n(v)$ резонансных частиц в возбужденном и основном состояниях с буферными частицами близки друг к другу. Причиной возникновения аномального СИД является различие зависимостей $\nu_m(v)$ и $\nu_n(v)$ и, как следствие, возможность изменения знака разности транспортных частот столкновений $\Delta\nu(v) \equiv \nu_m(v) - \nu_n(v)$. При этом в скорость дрейфа \mathbf{u}_L дают вклад поглощающие частицы как с положительным значением $\Delta\nu(v)$, так и с отрицательным. Это может приводить к сильному отличию формы линии СИД

от той, которую предсказывает теория нормального эффекта СИД, не учитывающая зависимости от скорости транспортных частот столкновений.

Если частоты $\nu_m(v)$ и $\nu_n(v)$ сильно отличаются друг от друга, то скорость дрейфа \mathbf{u}_L как функция частоты излучения соответствует нормальному СИД и хорошо описывается теорией СИД с независимыми от скорости транспортными частотами столкновений, т. е. при замене в выражении (13) частоты $\nu_i(v)$ ($i = m, n$) на среднюю транспортную частоту

$$\begin{aligned} \nu_i^{tr} &= \frac{2}{v_T^2} \int (\mathbf{n} \cdot \mathbf{v})^2 W(\mathbf{v}) \nu_i(v) d\mathbf{v} = \\ &= \frac{8}{3\sqrt{\pi}} \frac{\mu}{M} \frac{N_b}{u_T^5} \int_0^\infty u^5 \exp\left(-\frac{u^2}{u_T^2}\right) \sigma_i(u) du, \end{aligned} \quad (14)$$

где $v_T = (2k_B T/M)^{1/2}$ — наиболее вероятная скорость поглощающих частиц, $u_T = (2k_B T/\mu)^{1/2}$ — наиболее вероятная скорость относительного движения поглощающей и буферной частиц, \mathbf{n} — единичный вектор в произвольно выбранном направлении. Средняя транспортная частота ν_i^{tr} связана простой формулой с коэффициентом диффузии D_i частиц в состоянии i [3, 36]:

$$D_i = \frac{v_T^2}{2\nu_i^{tr}}. \quad (15)$$

Выражение (13) для скорости дрейфа, являющееся трехмерным интегралом, можно существенно упростить в случае большого доплеровского уширения

$$\Gamma(v) \ll kv_T. \quad (16)$$

Этот случай наиболее интересен для рассматриваемой здесь задачи, так как аномальный СИД проявляется максимально именно в условиях большого доплеровского уширения. При выполнении условия (16) из формулы (13) получим следующее выражение для скорости дрейфа:

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_L &= \frac{\mathbf{k}}{k} \frac{2BI}{\sqrt{\pi} k^2 v_T^3} \times \\ &\times \left[\Omega_n \frac{N_n}{N} \int_{|\Omega_n|/k}^\infty \tau(v) v \exp\left(-\frac{v^2}{v_T^2}\right) dv + \right. \\ &\left. + \Omega_k \frac{N_k}{N} \int_{|\Omega_k|/k}^\infty \tau(v) v \exp\left(-\frac{v^2}{v_T^2}\right) dv \right]. \end{aligned} \quad (17)$$

В выражении (17) относительные населенности подуровней сверхтонкой структуры основного состояния N_i/N находятся по формуле (6) с величинами $\langle Y_i \rangle$, принимающими вид

$$\langle Y_i \rangle = \frac{\sqrt{\pi}}{kv_T} \exp\left[-\left(\frac{\Omega_i}{kv_T}\right)^2\right]. \quad (18)$$

Таким образом, расчет скорости дрейфа в столкновительной модели (7) изотропного по скоростям «прихода» сводится к вычислению однократных интегралов (17).

Выражение (17) для скорости дрейфа справедливо при условии малой интенсивности излучения, когда распределение населенностей по скоростям на сверхтонких компонентах n, k в основном состоянии близко к максвелловскому (3). Из формул (4) и (12) следует, что для этого должно выполняться условие

$$\varkappa \equiv \frac{BI}{\pi\Gamma(\Gamma_m + \nu_m)} \ll 1. \quad (19)$$

Величина \varkappa имеет смысл параметра насыщения: он характеризует степень выравнивания населенностей у частиц с резонансными скоростями ($\Omega_i = \mathbf{k} \cdot \mathbf{v}$).

3. ТРАНСПОРТНОЕ СЕЧЕНИЕ РАССЕЯНИЯ

Для расчета транспортной частоты столкновений $\nu_i(v)$ по формуле (8) необходимо знать транспортное сечение рассеяния $\sigma_i(u)$ поглощающей частицы в состоянии i на буферной частице. Сечения $\sigma_i(u)$ вычисляются с использованием потенциалов взаимодействия поглощающих и буферных частиц. При не слишком низких температурах для $\sigma_i(u)$ справедлива формула классической механики¹⁾

$$\sigma_i(u) = 2\pi \int_0^\infty [1 - \cos \varphi_i(b, u)] b db, \quad (20)$$

где $\varphi_i(b, u)$ — угол рассеяния, b — прицельный параметр. Угол рассеяния вычисляется как функция b и u из классического уравнения движения:

$$\varphi_i(b, u) = \pi - 2b \int_{R_{min}}^\infty \left[1 - \frac{b^2}{R^2} - \frac{2V_i(R)}{\mu u^2}\right]^{-1/2} \frac{dR}{R^2}, \quad (21)$$

¹⁾ Условие квазиклассичности движения ($\lambda_B/\rho \ll 1$, λ_B — длина волны де Бройля, ρ — характерный радиус взаимодействия) в наших расчетах всегда выполнено при не слишком низких температурах. Это значит, что квантовые эффекты сказываются только при рассеянии на малые углы, которые не дают вклада в транспортное сечение $\sigma_i(u)$, и применение формул классической механики для расчета $\sigma_i(u)$ оправдано.

где $V_i(R)$ — потенциал взаимодействия резонансной частицы, находящейся в состоянии i , с буферной частицей; R — расстояние между центрами тяжести частиц; R_{min} — минимальное расстояние сближения частиц.

При расчете транспортных характеристик следует иметь в виду то обстоятельство, что одному определенному состоянию атома Li при его взаимодействии с атомом Ne может соответствовать несколько молекулярных термов. Наиболее простая ситуация возникает в том случае, когда атомы Li находятся в основном состоянии 2S . Для системы сталкивающихся частиц Li(2S)–Ne(1S) существует один молекулярный терм $X^2\Sigma$, и транспортное сечение рассчитывается непосредственно по формулам (20), (21) с помощью потенциала взаимодействия $X^2\Sigma$, соответствующего этому терму:

$$\sigma_n = \sigma(X^2\Sigma). \quad (22)$$

Ситуация усложняется в случае, когда атомы Li находятся в возбужденном состоянии 2P , так как системе сталкивающихся частиц Li(2P)–Ne(1S) соответствуют два молекулярных терма $A^2\Pi$ и $B^2\Sigma$. К счастью, расчеты существенно упрощаются, если учесть, что при не слишком низких температурах происходит сильное столкновительное перемешивание между этими термами. В этом случае общее сечение рассеяния атомов Li вычисляется путем усреднения (с учетом статистических весов молекулярных термов) сечений рассеяния, рассчитанных для индивидуальных термов $A^2\Pi$ и $B^2\Sigma$ [37, 38]:

$$\sigma_m = \frac{1}{3} [\sigma(B^2\Sigma) + 2\sigma(A^2\Pi)]. \quad (23)$$

4. АНОМАЛЬНЫЙ СИД АТОМОВ ЛИТИЯ

Используя формулы (8), (17), (18), мы численно исследовали СИД атомов лития в инертном буферном газе неоне. Транспортные частоты столкновений $\nu_n(v)$ и $\nu_m(v)$ для системы сталкивающихся частиц Li–Ne рассчитывались нами численно по формулам (8), (20)–(23) с использованием четырех различных неэмпирических (вычисленных *ab initio*) потенциалов взаимодействия атомов Li в различных состояниях с атомами Ne [28–31]. Таблично заданные потенциалы взаимодействия интерполировались кубическими сплайнами.

Хорошим критерием для определения возможности возникновения аномального СИД является знакопеременная зависимость от температуры разности усредненных транспортных частот столкнове-

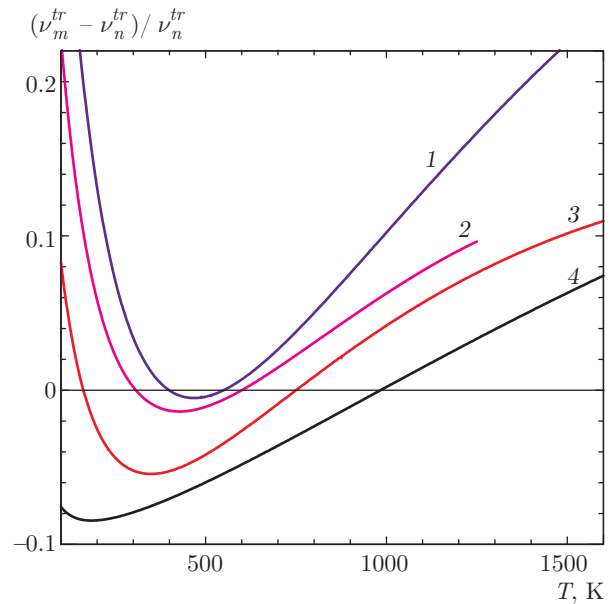


Рис. 2. Температурные зависимости относительной разности $(\nu_m^{tr} - \nu_n^{tr})/\nu_n^{tr}$ средних транспортных частот столкновений атомов Li в возбужденном (индекс m) и основном (индекс n) состояниях с атомами Ne. Приведены расчеты по потенциалам [30] — 1, [29] — 2, [31] — 3, [28] — 4

ний (14) $\nu_m^{tr} - \nu_n^{tr}$ или, что то же самое, разности коэффициентов диффузии (15) $D_m - D_n$ в возбужденном и основном состояниях резонансных атомов с буферными частицами. Аномальный СИД следует ожидать в окрестности тех температур, при которых разность $\nu_m^{tr} - \nu_n^{tr}$ (или $D_m - D_n$) обращается в нуль (в этих условиях должна проявиться зависимость частот столкновений от скорости). Именно эти критерии использовались в работах [17, 21, 22, 24, 26, 27] для определения объектов, «претендующих» на возможность возникновения аномального СИД.

На рис. 2 представлены температурные зависимости относительной разности $(\nu_m^{tr} - \nu_n^{tr})/\nu_n^{tr}$ средних транспортных частот столкновений атомов Li в возбужденном и основном состояниях с атомами Ne. Для величины $(\nu_m^{tr} - \nu_n^{tr})/\nu_n^{tr}$ расчеты по каждому из четырех потенциалов [28–31] показывают ее сильную температурную зависимость и обращение в нуль при определенных температурах. Для потенциалов [30], [29], [31] и [28] (им соответствуют кривые 1, 2, 3 и 4 на рис. 2) величина $(\nu_m^{tr} - \nu_n^{tr})/\nu_n^{tr}$ обращается в нуль при температурах соответственно $T \approx 400$ К и $T \approx 550$ К (кривая 1), $T \approx 300$ К и $T \approx 600$ К (кривая 2), $T \approx 170$ К и $T \approx 750$ К (кривая 3), $T \approx 1000$ К (кривая 4). Следовательно, в окрестностях этих температур должен возникать

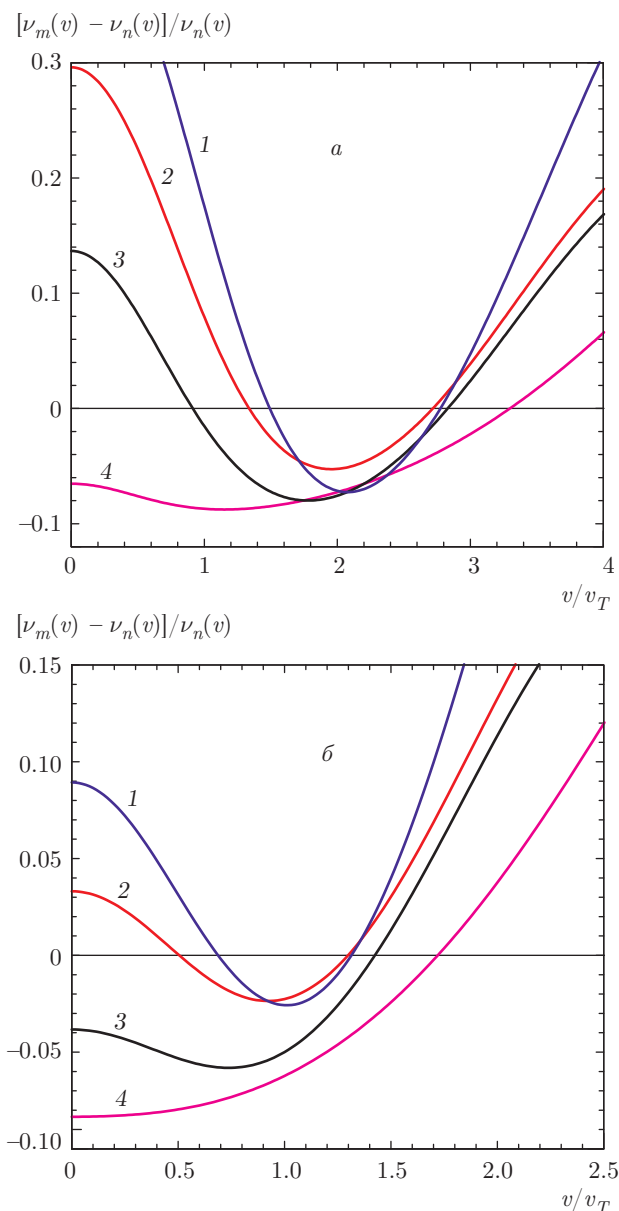


Рис. 3. Зависимости от скорости относительной разности транспортных частот столкновений $[\nu_m(v) - \nu_n(v)]/\nu_n(v)$ атомов Li в возбужденном и основном состояниях с атомами Ne. Приведены расчеты по потенциалам [30] — 1, [29] — 2, [31] — 3, [28] — 4; $T = 300$ (а), 900 (б) К

аномальный СИД атомов Li в буферном газе Ne при возбуждении D_1 - или D_2 -линий атомов лития.

На рис. 3 представлены рассчитанные по формуле (8) зависимости от скорости v относительной разности транспортных частот столкновений $[\nu_m(v) - \nu_n(v)]/\nu_n(v)$ атомов Li в возбужденном и основном состояниях с атомами Ne. Приведены расчеты для каждого из четырех потенциалов взаимодействия [28–31] для двух температур $T = 300$ К и $T = 900$ К. Из формулы (17) видно, что благо-

даря коэффициенту $v \exp(-v^2/v_T^2)$ основной вклад в интеграл для скорости дрейфа \mathbf{u}_L дают частицы со скоростями $v \sim v_T$. При температуре $T = 300$ К для потенциала [28] в области $v \sim v_T$ знак разности частот столкновений $\nu_m(v) - \nu_n(v)$ не изменяется (кривая 4 на рис. 3а), поэтому при этой температуре расчеты по потенциалу [28] будут предсказывать нормальный СИД атомов Li. Для трех потенциалов [29–31] при температуре $T = 300$ К знак разности частот столкновений $\nu_m(v) - \nu_n(v)$ изменяется в области $v \sim v_T$ (кривые 1, 2 и 3 на рис. 3а), поэтому в окрестности $T \approx 300$ К расчеты по этим потенциалам будут предсказывать аномальный СИД атомов Li в буферной среде Ne. При температуре $T = 900$ К все четыре потенциала взаимодействия [28–31] дают изменение знака разности частот столкновений в области $v \sim v_T$ (рис. 3б), поэтому в окрестности $T \approx 900$ К для всех этих потенциалов реализуется аномальный СИД.

Используя формулы (8), (17), (18), мы численно исследовали СИД атомов ^7Li в инертном буферном газе Ne для четырех потенциалов взаимодействия [28–31]. Для атомов лития, согласно данным сайта NIST [39], скорость спонтанного распада возбужденного состояния $2^2P_{3/2}$ равна $\Gamma_m = 3.69 \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$, длина волны D_2 -линии $\lambda = 670.8 \text{ нм}$. Величина однородной полуширины линии поглощения $\Gamma = \Gamma_m/2 + \gamma$ определялась по данным [40] для коэффициента ударного уширения $\beta = 5.50 \text{ МГц/Торр}$ для атомов Li в атмосфере Ne.

На рис. 4 представлены результаты численных расчетов по формуле (17) проекции скорости светиндуцированного дрейфа на направление излучения $u_L \equiv \mathbf{k} \cdot \mathbf{u}_L/k$ в зависимости от отстройки частоты Ω для атомов ^7Li в буферном газе Ne в случае возбуждения D_2 -перехода атомов ^7Li . Все расчеты выполнены при интенсивности монохроматического излучения $I = 40 \text{ мВт/см}^2$ и давлении буферного газа $p_{buf} = 5 \text{ Торр}$ (при этих параметрах условия (16) и (19) применимости формулы (17) хорошо выполнены: $\Gamma/kv_T = 0.024$ при $T = 300 \text{ К}$ и $\varkappa = 0.2$) и для пяти значений температур T . В качестве отстройки Ω частоты излучения введена величина

$$\Omega = \omega - \omega_0, \quad \omega_0 = \frac{g_n \omega_{mn} + g_k \omega_{mk}}{g_n + g_k}. \quad (24)$$

Частота ω_0 соответствует «центру тяжести» частот переходов ω_{mn} и ω_{mk} с учетом статистических весов уровней n и k . В области «нормального» СИД (когда в (17) можно делать замену $\nu_{n,m}(v) \rightarrow \nu_{n,m}^{tr}$) скорость дрейфа \mathbf{u}_L обращается в нуль только в одной точке $\Omega = 0$ [41].

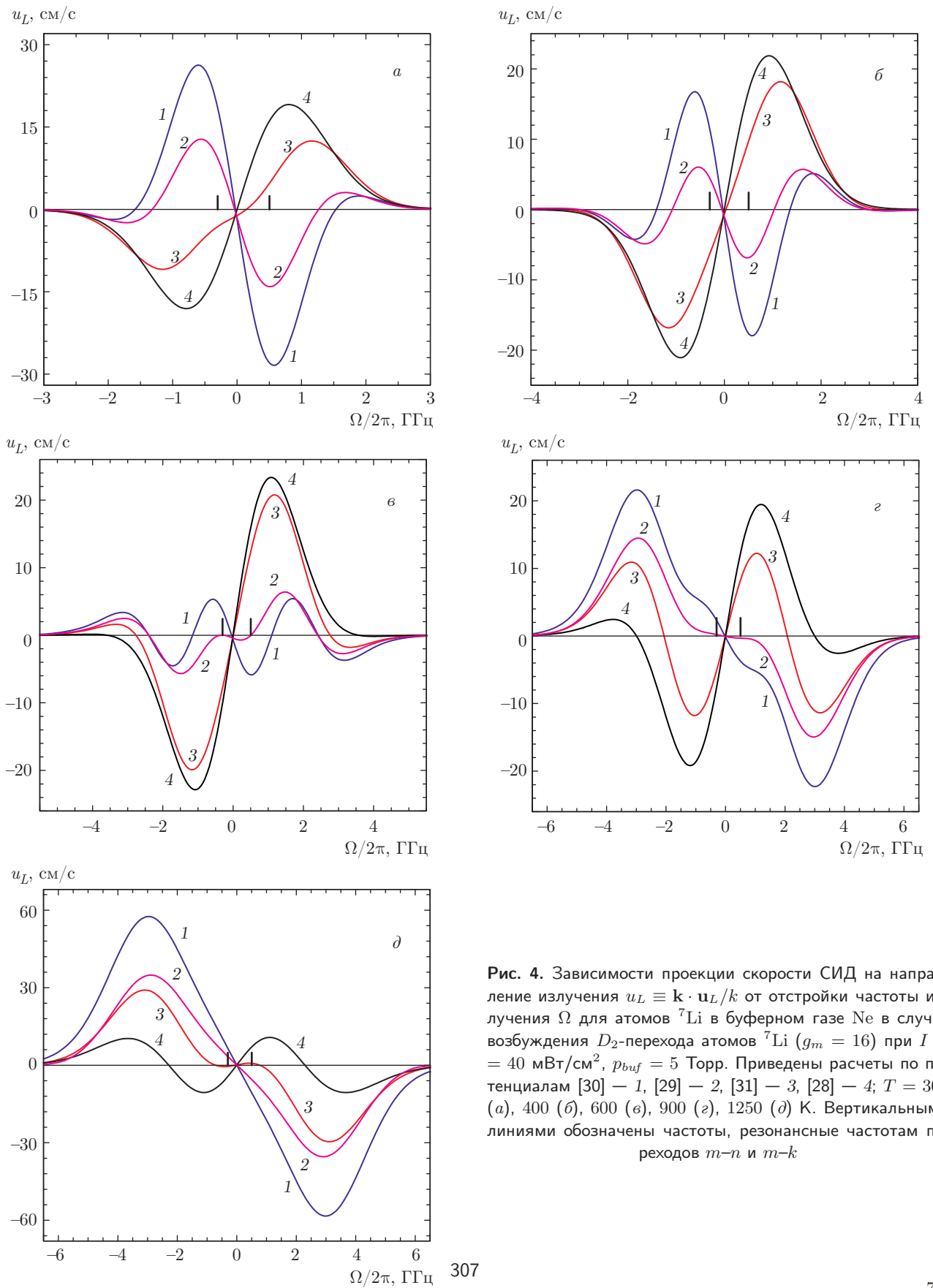


Рис. 4. Зависимости проекции скорости СИД на направление излучения $u_L \equiv \mathbf{k} \cdot \mathbf{u}_L / k$ от отстройки частоты излучения Ω для атомов ${}^7\text{Li}$ в буферном газе Ne в случае возбуждения D_2 -перехода атомов ${}^7\text{Li}$ ($g_m = 16$) при $I = 40$ мВт/см², $p_{\text{buf}} = 5$ Торр. Приведены расчеты по потенциалам [30] — 1, [29] — 2, [31] — 3, [28] — 4; $T = 300$ (а), 400 (б), 600 (в), 900 (г), 1250 (д) К. Вертикальными линиями обозначены частоты, резонансные частотам переходов $m-n$ и $m-k$

Из рис. 4 видно, что расчеты с использованием каждого из четырех потенциалов взаимодействия [28–31] предсказывают возникновение аномального СИД атомов Li в атмосфере Ne при различных температурах и в различных интервалах температур. Максимальные аномалии формы линии СИД (максимальное отклонение от формы линии нормального СИД) возникают при температурах $T = 400, 600, 900$ и 1250 К при расчетах по потенциалам [29] (кривая 2 на рис. 4б), [30] (кривая 1 на рис. 4в), [31] (кривая 3 на рис. 4г) и [28] (кривая 4 на рис. 4д) соответственно. Для атомов ${}^7\text{Li}$ скорость дрейфа как функция частоты излучения может иметь, в зависимости от температуры, один, три или даже пять (кривая 1 на рис. 4в) нулей. Очень важным является то обстоятельство, что форма линии СИД (зависимость $u_L(\Omega)$) оказывается очень чувствительной к различию потенциалов взаимодействия, используемых для расчетов скорости СИД. Таким образом, полученные результаты дают возможность высокоточного тестирования межатомных потенциалов взаимодействия резонансных и буферных частиц в экспериментах по аномальному СИД атомов лития.

Предварительный вывод о точности потенциалов взаимодействия [28–31] можно сделать, проведя сравнение рассчитанных в настоящей работе и измеренных в экспериментах [42] по светоиндуцированному диффузионному втягиванию (выгаливанию) (СДВ) значений $(D_m - D_n)/D_n$ относительной разности коэффициентов диффузии атомов лития в возбужденном и основном состояниях в атмосфере инертного буферного газа неона. В эффекте СДВ [43], в отличие от эффекта СИД, спектральные аномалии не возникают [44]. Величина эффекта СДВ всегда пропорциональна относительной разности усредненных транспортных частот столкновений $(\nu_m^{tr} - \nu_n^{tr})/\nu_n^{tr}$ (а значит, и относительной разности коэффициентов диффузии $(D_m - D_n)/D_n$) в возбужденном и основном состояниях резонансных атомов с буферными частицами. Для атомов Li в атмосфере Ne при температуре $T = 600$ К измеренное в эксперименте [42] значение $(D_m - D_n)/D_n = 0.026 \pm 0.006$. Расчетные значения $(D_m - D_n)/D_n$ для потенциалов [31], [28], [30] и [29] равны соответственно 0.026, 0.051, -0.009 и -0.0014 . Таким образом, потенциал взаимодействия [31] отлично описывает экспериментальный результат [42], и расчету аномального СИД атомов Li на его основе следует уделять приоритетное внимание (кривые 3 на рис. 4).

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе на основе четырех известных межатомных потенциалов взаимодействия исследован аномальный СИД атомов лития в буферном газе неоне. Расчеты с использованием каждого из четырех потенциалов взаимодействия предсказывают сильную зависимость от температуры формы линии СИД атомов Li в атмосфере Ne в различных интервалах температур. Как показывают результаты данной работы, даже малое различие в межатомных потенциалах взаимодействия резонансных и буферных частиц сильно проявляется в частотной зависимости скорости дрейфа в области аномального СИД. Экспериментальное исследование аномального СИД лития позволит тестировать тонкие детали межатомных потенциалов взаимодействия.

Исследование выполнено за счет средств субсидии на финансовое обеспечение выполнения государственного задания (проект № АААА-А17-117052210003-4) в ИАиЭ СО РАН и при финансовой поддержке гранта Президента РФ по государственной поддержке ведущих научных школ РФ № НШ-6898.2016.2.

ЛИТЕРАТУРА

1. Ф. Х. Гельмуханов, А. М. Шалагин, Письма в ЖЭТФ **29**, 773 (1979).
2. Ф. Х. Гельмуханов, А. М. Шалагин, ЖЭТФ **78**, 1674 (1980).
3. S. G. Rautian and A. M. Shalagin, *Kinetic Problems of Nonlinear Spectroscopy*, North-Holland, Amsterdam, New York, Oxford (1991).
4. G. Nienhuis, Phys. Rep. **138**, 151 (1986).
5. H. G. C. Werij and J. P. Woerdman, Phys. Rep. **169**, 145 (1988).
6. П. Л. Чаповский, Изв. АН СССР, сер. физ. **53**, 1069 (1989).
7. E. R. Eliel, Adv. Atom. Mol. Opt. Phys. **30**, 199 (1992).
8. B. Nagels, P. L. Chapovsky, L. J. F. Hermans, G. J. van der Meer, and A. M. Shalagin, Phys. Rev. A **53**, 4305 (1996).
9. E. J. van Duijn, R. Nokhai, and L. J. F. Hermans, J. Chem. Phys. **105**, 6375 (1996).

10. С. Н. Атутов, И. М. Ермолаев, А. М. Шалагин, ЖЭТФ **92**, 1215 (1987).
11. G. J. van der Meer, J. Smeets, S. P. Pod'yachev, and L. J. F. Hermans, Phys. Rev. A **45**, R1303 (1992).
12. G. J. van der Meer, B. Broers, P. L. Chapovsky, and L. J. F. Hermans, J. Phys. B **25**, 5359 (1992).
13. P. L. Chapovsky, G. J. van der Meer, J. Smeets, and L. J. F. Hermans, Phys. Rev. A **45**, 8011 (1992).
14. G. J. van der Meer, J. Smeets, E. R. Eliel, P. L. Chapovsky, and L. J. F. Hermans, Phys. Rev. A **47**, 529 (1993).
15. E. J. van Duijn, H. I. Bloemink, E. R. Eliel, and L. J. F. Hermans, Phys. Lett. A **184**, 93 (1993).
16. I. Kuščer, L. J. F. Hermans, P. L. Chapovsky, J. J. M. Beenakker, and G. J. van der Meer, J. Phys. B **26**, 2837 (1993).
17. F. Yahyaei-Moayyed and A. D. Streater, Phys. Rev. A **53**, 4331 (1996).
18. F. Kh. Gel'mukhanov and A. I. Parkhomenko, Phys. Lett. A **162**, 45 (1992).
19. Ф. Х. Гельмуханов, А. И. Пархоменко, ЖЭТФ **102**, 424 (1992).
20. F. Kh. Gel'mukhanov, G. V. Kharlamov, and S. G. Rautian, Opt. Commun. **94**, 521 (1992).
21. F. Kh. Gel'mukhanov and A. I. Parkhomenko, J. Phys. B **28**, 33 (1995).
22. F. Kh. Gel'mukhanov, A. I. Parkhomenko, T. I. Privalov, and A. M. Shalagin, J. Phys. B **30**, 1819 (1997).
23. А. И. Пархоменко, ЖЭТФ **115**, 1664 (1999).
24. А. И. Пархоменко, ЖЭТФ **116**, 1587 (1999).
25. А. И. Пархоменко, А. М. Шалагин, КЭ **43**, 162 (2013).
26. А. И. Пархоменко, А. М. Шалагин, ЖЭТФ **145**, 223 (2014).
27. А. И. Пархоменко, А. М. Шалагин, КЭ **44**, 928 (2014).
28. J. Pascale and J. Vandeplanque, J. Chem. Phys. **60**, 2278 (1974).
29. D. Zanuttini, E. Jacquet, E. Giglio, J. Douady, and B. Gervais, J. Chem. Phys. **131**, 214104 (2009).
30. L. A. Blank, G. S. Kedziora, and D. E. Weeks, Proc. SPIE **7581**, 75810I (2010).
31. S. Bouchoucha, K. Alioua, and M. Bouledroua, Chinese Phys. B **26**, 073202 (2017).
32. А. А. Радциг, Б. М. Смирнов, *Параметры атомов и атомных ионов: Справочник*, Энергоатомиздат, Москва (1986).
33. И. И. Собельман, *Введение в теорию атомных спектров*, Наука, Москва (1977).
34. W. Happer, Rev. Mod. Phys. **44**, 169 (1972).
35. Л. В. Ильичев, А. И. Пархоменко, ЖЭТФ **112**, 856 (1997).
36. F. Kh. Gel'mukhanov, L. V. Il'ichov, and A. M. Shalagin, Physica A **137**, 502 (1986).
37. W. A. Hamel, J. E. M. Haverkort, H. G. C. Werij, and J. P. Woerdman, J. Phys. B **19**, 4127 (1986).
38. R. H. G. Reid, J. Phys. B **8**, L493 (1975).
39. NIST Atomic Spectra Database: <https://www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database>.
40. N. Allard and J. Kielkopf, Rev. Mod. Phys. **54**, 1103 (1982).
41. S. N. Atutov, A. I. Parkhomenko, S. P. Pod'yachev, and A. M. Shalagin, J. Phys. B **25**, 2943 (1992).
42. S. N. Atutov, B. V. Bondarev, S. M. Kobtzev, P. V. Kolinko, S. P. Pod'yachev, and A. M. Shalagin, Opt. Commun. **115**, 276 (1995).
43. Ф. Х. Гельмуханов, А. М. Шалагин, ЖЭТФ **77**, 461 (1979).
44. А. И. Пархоменко, А. М. Шалагин, КЭ **45**, 131 (2015).