

# Частоты столкновений в кинетических уравнениях для матрицы плотности, описывающих нелинейные эффекты в крыльях спектральных линий

А.И.Пархоменко, А.М.Шалагин

*В приближении эйконала рассчитаны эффективные частоты столкновений в кинетических уравнениях для матрицы плотности, описывающих нелинейные эффекты в крыльях спектральных линий. Установлена связь вероятностей поглощения и вынужденного испускания с характеристиками излучения и элементарного акта рассеяния. На примере степенного потенциала взаимодействия показано, что квантовомеханический расчет частот столкновений в приближении эйконала и известная ранее теория крыла спектральной линии дают близкие результаты для вероятности поглощения излучения.*

**Ключевые слова:** матрица плотности, кинетические уравнения, столкновения, крыло спектральной линии, коэффициенты Эйнштейна, инверсия населенностей, генерация излучения.

## 1. Введение

До недавнего времени считалось, что вследствие равенства вероятностей процессов поглощения и вынужденного испускания непрерывное лазерное излучение способно лишь выравнивать населенности уровней в двухуровневой системе, но никак не создать инверсию населенностей. Однако, как оказалось, это укоренившееся представление в определенных условиях не соответствует действительности. В целом ряде работ [1–10] было показано, что в крыле линии поглощения активных частиц газа при наличии частых столкновений с буферными частицами (термостат) вероятности поглощения и вынужденного испускания не равны друг другу. Как выяснилось, спектральные плотности коэффициентов Эйнштейна для поглощения ( $b_{12}(\Omega)$ ) и вынужденного испускания ( $b_{21}(\Omega)$ ) связаны между собой соотношением [7, 8]

$$b_{21}(\Omega) = b_{12}(\Omega)\exp[-h\Omega/(k_B T)], \quad (1)$$

где  $\Omega = \omega - \omega_{21}$  – отстройка частоты излучения  $\omega$  от частоты перехода  $\omega_{21}$  между уровнями  $|2\rangle$  и  $|1\rangle$ ;  $h$  – постоянная Планка;  $k_B$  – постоянная Больцмана;  $T$  – температура. Соотношение (1) сохраняет силу при любом знаке  $\Omega$ . В случае  $h|\Omega| \ll k_B T$  из (1) следует каноническое равенство для вероятностей поглощения и индуцированного испускания.

В соответствии с (1) возможны установление инверсии населенностей в двухуровневой системе при нерезонансном поглощении непрерывного излучения и, как следствие, генерация излучения на резонансной частоте. В работах [6, 8–10] этот эффект зарегистрирован экспериментально – наблюдалось возникновение лазерной генерации в режиме суперлюминесценции (за один проход активной среды) на резонансном переходе атомов натрия

при поглощении излучения накачки в «синем» крыле спектральной линии. Генерация возникала только в присутствии буферного газа при достаточно высоком его давлении (более 200 Тор).

Обнаруженный эффект не описывается широко используемыми в настоящее время квантовыми кинетическими уравнениями для матрицы плотности (см., напр., [11, 12]). Из этих уравнений не следуют соотношение (1) и возможность возникновения инверсии населенностей в двухуровневой системе при нерезонансном оптическом возбуждении. В недавней нашей работе [13] выведены квантовые кинетические уравнения для матрицы плотности двухуровневых частиц с интегралами столкновений, описывающими нелинейные эффекты в крыльях спектральных линий. Из этих уравнений следует установленный ранее факт неравенства спектральных плотностей коэффициентов Эйнштейна для поглощения и вынужденного испускания двухуровневой квантовой системой излучения в далеком крыле спектральной линии в условиях частых столкновений. Установлена также связь частот столкновений, входящих в эти уравнения, с характеристиками излучения и элементарного акта рассеяния. При этом задача их вычисления сводится к стандартной задаче вычисления частот столкновений при известном потенциале взаимодействия сталкивающихся частиц. В работе [13] конкретный расчет частот столкновений выходил за рамки предпринятого анализа и не проводился. Настоящая работа восполняет этот пробел и посвящена расчету частот столкновений в кинетических уравнениях для матрицы плотности, полученных в [13] и описывающих нелинейные эффекты в крыльях спектральных линий.

## 2. Постановка задачи

Кинетические уравнения для матрицы плотности, определенной в базисе невозмущенных атомных состояний, получены в работе [13] при следующей постановке задачи. Рассматривался газ поглощающих излучение двухуровневых частиц (с основным уровнем  $|1\rangle$  и возбужденным уровнем  $|2\rangle$ ), находящийся в смеси с буферным газом. Столкновения между поглощающими частицами не учи-

А.И.Пархоменко, А.М.Шалагин. Институт автоматики и электрометрии СО РАН, Россия, 630090 Новосибирск, просп. Акад. Коптюга, 1; e-mail: par@iae.nsk.su, shalagin@iae.nsk.su

Поступила в редакцию 26 июня 2011 г., после доработки – 30 августа 2011 г.

тывались ввиду того, что концентрация буферного газа  $N_b$  полагалась много большей концентрации поглощающего газа  $N$ . Считалось, что при столкновениях внутренние состояния двухуровневых частиц не меняются (упругие столкновения). На поглощающие частицы воздействует монохроматическое поле  $\mathcal{E} = \text{Re}E \exp(-i\omega t)$  с частотой  $\omega$ , близкой к частоте  $\omega_{21}$  перехода  $|2\rangle - |1\rangle$  между уровнями (здесь  $E$  – напряженность электрического поля излучения). Рассматривался случай однородного уширения линии поглощения, когда доплеровская ширина мала по сравнению с ударной (случай достаточно высокого давления буферного газа). Полагалось, что отстройка  $\Omega = \omega - \omega_{21}$  частоты излучения от резонанса мала по сравнению с частотой перехода,  $|\Omega| \ll \omega_{21}$  (резонансное приближение, или приближение вращающейся волны), но в то же время велика по сравнению с ударной полушириной линии поглощения  $\Gamma$ ,

$$|\Omega| \gg \Gamma. \quad (2)$$

В работе [13] при выводе кинетических уравнений для матрицы плотности основной задачей являлось нахождение интегралов столкновений, описывающих изменение элементов матрицы плотности за счет упругих столкновений с частицами буферного газа в области отстроек частоты излучения, сильно превышающих ударную полуширину линии поглощения (см. условие (2)), когда радиационные переходы осуществляются в акте столкновения, а не на свободном пробеге (это так называемые оптические столкновения [14–16]). Столкновительная задача решалась на основе представлений о компаунд-системах «взаимодействующие атом + поле» (атом, «одетый» полем) [16, 17] как о самостоятельном физическом объекте, с которым можно обращаться примерно так же, как и с обычной частицей. При таком подходе естественным образом учитывается участие поля излучения в актах столкновений «одетого» атома с буферными частицами.

Рассмотренная в [13] картина столкновительной релаксации позволила свести задачу к эффективной двухуровневой модели «одетых» атомов (с двумя уровнями  $|\varphi_1(n)\rangle$  и  $|\varphi_2(n)\rangle$ , рис.1). Эти уровни характеризуются волновыми функциями [16, 17]

$$\begin{aligned} |\varphi_1(n)\rangle &= b_1|1\rangle|n\rangle + b_2|2\rangle|n-1\rangle, \\ |\varphi_2(n)\rangle &= b_2^*|1\rangle|n\rangle - b_1|2\rangle|n-1\rangle, \end{aligned} \quad (3)$$

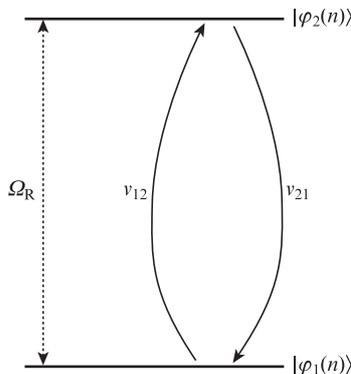


Рис.1. Эффективная двухуровневая модель «одетых» атомов для столкновительной задачи. Между уровнями  $|\varphi_1(n)\rangle$  и  $|\varphi_2(n)\rangle$  происходят столкновительные переходы с частотами  $\nu_{12}$  и  $\nu_{21}$ .

где  $b_1, b_2$  – коэффициенты разложения функций компаунд-системы по волновым функциям невзаимодействующих атома (состояния  $|1\rangle, |2\rangle$ ) и поля (состояние  $|n\rangle$ ,  $n$  – число фотонов в лазерном поле):

$$b_1 = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{1 - \frac{\Omega}{\Omega_R}}; \quad b_2 = \frac{G}{|G|} \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{1 + \frac{\Omega}{\Omega_R}};$$

$$\hbar\Omega_R = \sqrt{4|G|^2 + \Omega^2}; \quad G = \frac{d_{21}E}{2\hbar}; \quad (4)$$

$d_{21}$  – матричный элемент дипольного момента перехода  $|2\rangle - |1\rangle$ . Строго говоря, коэффициенты  $b_1$  и  $b_2$  зависят от  $n$ . Однако мы пренебрегли их изменением в зависимости от  $n$ , полагая, что в квантовомеханическом состоянии лазерного поля неопределенность числа фотонов  $\Delta n$  много меньше среднего числа фотонов  $\bar{n}$ , которое считаем большим:

$$\Delta n \ll \bar{n}, \quad \bar{n} \gg 1. \quad (5)$$

Состояниям  $|\varphi_i(n)\rangle$  «одетого» атома соответствуют энергии  $E_i(n)$  ( $i = 1, 2$ ), связанные между собой соотношением

$$E_2(n) = E_1(n) + \hbar\Omega_R. \quad (6)$$

Согласно (6) состояние  $|\varphi_2(n)\rangle$  «одетого» атома расположено выше состояния  $|\varphi_1(n)\rangle$  на величину обобщенной частоты Раби  $\Omega_R$  (в частотной шкале) (рис.1). Между уровнями  $|\varphi_1(n)\rangle$  и  $|\varphi_2(n)\rangle$  происходят столкновительные переходы с частотами  $\nu_{12}$  и  $\nu_{21}$  (эти переходы показаны на рис.1 изогнутыми стрелками), а релаксация низкочастотной когерентности между состояниями  $|\varphi_2(n)\rangle$  и  $|\varphi_1(n)\rangle$  характеризуется частотой  $\nu$ . Изменением частот при изменении  $n$  с учетом условия (5) можно пренебречь. Именно эти частоты столкновений ( $\nu_{12}, \nu_{21}$  и  $\nu$ ) входят в итоговые кинетические уравнения для матрицы плотности, описывающие нелинейные эффекты в крыльях спектральных линий [13].

Для эффективной двухуровневой модели «одетых» атомов (рис.1) можно использовать уже известные выражения для интегралов столкновений [12, 18], полученные в рамках ударного приближения (это приближение означает, что время столкновения значительно меньше времени свободного пробега). Предполагая, что активные и буферные частицы имеют равновесное (максвелловское) распределение по скоростям, для частот столкновений  $\nu_{12}, \nu_{21}$  из формул, приведенных в [12, 18], можно получить следующие выражения, описывающие их через характеристики элементарного акта рассеяния (через амплитуды рассеяния) [13]:

$$\begin{aligned} \nu_{12} &= \frac{2N_b}{(\sqrt{\pi}\bar{u})^3} \int d\mathbf{u} d\mathbf{u}_1 \exp\left(-\frac{\mathbf{u}^2}{\bar{u}^2}\right) |f_{21}(\mathbf{u}_1|\mathbf{u})|^2 \\ &\quad \times \delta\left(\mathbf{u}_1^2 - \mathbf{u}^2 + \frac{2\hbar\Omega_R}{\mu}\right), \end{aligned} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} \nu_{21} &= \frac{2N_b}{(\sqrt{\pi}\bar{u})^3} \int d\mathbf{u} d\mathbf{u}_1 \exp\left(-\frac{\mathbf{u}^2}{\bar{u}^2}\right) |f_{12}(\mathbf{u}_1|\mathbf{u})|^2 \\ &\quad \times \delta\left(\mathbf{u}_1^2 - \mathbf{u}^2 - \frac{2\hbar\Omega_R}{\mu}\right), \quad \bar{u} = \sqrt{\frac{2k_B T}{\mu}}, \end{aligned}$$

где  $\mathbf{u}$  и  $\mathbf{u}_1$  – относительные скорости сталкивающихся частиц соответственно до и после столкновения;  $\mu$  – приведенная масса сталкивающихся частиц;  $\delta(x)$  – дельта-функция;  $f_{ji}(\mathbf{u}_1|\mathbf{u})$  – амплитуды рассеяния «одетого» атома на бесструктурной буферной частице; индексами  $i$  и  $j$  ( $i, j = 1, 2$ ) обозначена совокупность квантовых чисел соответственно начального и конечного состояний «одетого» атома (индексу 1 отвечает состояние  $|\varphi_1(n)\rangle$  с энергией  $E_1(n)$ , а индексу 2 – состояние  $|\varphi_2(n)\rangle$  с энергией  $E_2(n)$ , см. рис.1).

Для расчета амплитуд рассеяния, входящих в формулу (7), нужно знать матричные элементы  $W_{ij}$  оператора взаимодействия сталкивающихся частиц  $\hat{U}$  в базисе «одетых» состояний:

$$W_{ij} = \langle \varphi_i(n) | \hat{U} | \varphi_j(n) \rangle, \quad i, j = 1, 2. \quad (8)$$

Матричные элементы  $W_{11}$  и  $W_{22}$  оператора взаимодействия  $\hat{U}$  характеризуют столкновительные сдвиги уровней  $|\varphi_1(n)\rangle$  и  $|\varphi_2(n)\rangle$  компаунд-системы, а матричные элементы  $W_{12}$  и  $W_{21}$  характеризуют столкновительные переходы между уровнями  $|\varphi_1(n)\rangle$  и  $|\varphi_2(n)\rangle$  этой системы.

Принимая во внимание соотношения (3), для матричных элементов  $W_{ij}$  получаем следующие выражения, описывающие их через матричные элементы  $U_{ii}$  оператора взаимодействия в базисе невозмущенных состояний атома (полагаем, что между уровнями активной частицы столкновительных переходов нет, поэтому  $U_{12} = U_{21} = 0$ ) [6, 14, 16]:

$$\begin{aligned} W_{11} &= \frac{U_{11} + U_{22}}{2} - \frac{\Omega}{2\Omega_R}(U_{11} - U_{22}), \\ W_{22} &= \frac{U_{11} + U_{22}}{2} + \frac{\Omega}{2\Omega_R}(U_{11} - U_{22}), \end{aligned} \quad (9)$$

$$W_{12} = \frac{G^*}{\Omega_R}(U_{11} - U_{22}), \quad W_{21} = W_{12}^*, \quad U_{ii} = \langle i | \hat{U} | i \rangle, \quad i = 1, 2.$$

Матричные элементы  $U_{ij}$  характеризуют сдвиги уровней  $|i\rangle$  активной частицы за счет столкновений. Заметим, что матричные элементы  $W_{ij}$  содержат в себе как параметры исходного потенциала взаимодействия сталкивающихся частиц, так и параметры излучения. Это значит, что в акте столкновения участвует квант излучения. В базисе невозмущенных состояний атома столкновения не приводят к переходам между состояниями  $|1\rangle$  и  $|2\rangle$  ( $U_{12} = 0$ ) и в этом смысле являются «упругими». Ненулевая интенсивность излучения ( $G \neq 0$ ) вызывает появление столкновительных переходов между уровнями  $|\varphi_1(n)\rangle$  и  $|\varphi_2(n)\rangle$  «одетого» атома ( $W_{12} \neq 0$ ), т. е. при столкновениях возникает неупругий канал с энергетическим «зазором»  $\hbar\Omega_R$ . Происходит изменение и упругого канала рассеяния.

Для частот столкновительных переходов  $\nu_{12}$  и  $\nu_{21}$  из выражений (7) с использованием теоремы взаимности для амплитуд прямого и обратного процессов [12, 19] нетрудно получить соотношение

$$\frac{\nu_{12}}{\nu_{21}} = \exp\left(-\frac{\hbar\Omega_R}{k_B T}\right), \quad (10)$$

отражающее принцип детального равновесия (см., напр., [20]).

Итоговые кинетические уравнения для матрицы плотности в невозмущенном атомном базисе, описывающие не-

линейные эффекты в крыльях спектральных линий, имеют достаточно сложный вид [13] и мы их здесь не приводим. При не слишком высокой интенсивности излучения, такой, что

$$|G| \ll |\Omega|, \quad (11)$$

кинетические уравнения для матрицы плотности существенно упрощаются и сводятся к балансному уравнению для населенностей уровней [13]:

$$\left(\frac{d}{dt} + A\right)\rho_{22} = \begin{cases} \nu_{21}\rho_{11} - \nu_{12}\rho_{22}, & \Omega > 0, \\ \nu_{12}\rho_{11} - \nu_{21}\rho_{22}, & \Omega < 0. \end{cases} \quad (12)$$

Здесь  $\rho_{ii}$  – населенность уровня  $|i\rangle$  ( $i = 1, 2$ );  $A$  – скорость спонтанного распада возбужденного уровня [2]. Населенности уровней связаны с концентрацией  $N$  поглощающих частиц соотношением (условие нормировки)

$$\rho_{11} + \rho_{22} = N. \quad (13)$$

При не слишком высокой интенсивности излучения (11) в соотношении (10) для частот столкновений  $\nu_{12}$  и  $\nu_{21}$  можно положить

$$\Omega_R = |\Omega|. \quad (14)$$

С учетом этого балансное уравнение (12) принимает вид

$$\begin{aligned} \left(\frac{d}{dt} + A\right)\rho_{22} &= \begin{cases} \nu_{21}\{\rho_{11} - \rho_{22} \exp[-\hbar|\Omega|/(k_B T)]\}, & \Omega > 0, \\ \nu_{21}\{\rho_{11} \exp[-\hbar|\Omega|/(k_B T)] - \rho_{22}\}, & \Omega < 0. \end{cases} \end{aligned} \quad (15)$$

В этом уравнении неизвестной является только одна величина – частота столкновений  $\nu_{21}$ . Остальные величины либо хорошо известны (скорость  $A$  спонтанного распада возбужденного уровня), либо задаются условиями эксперимента (отстройка частоты  $\Omega$ , температура  $T$ ). Далее мы займемся конкретным расчетом частоты столкновений  $\nu_{21}$ , входящей в уравнение (15).

### 3. Расчет частоты столкновений $\nu_{21}$ в приближении эйконала

Вычисление частоты столкновений  $\nu_{21}$  по формуле (7) фактически сводится к расчету амплитуды рассеяния  $f_{12}(\mathbf{u}_1|\mathbf{u})$ . Ее расчет в общем случае является сложной задачей и трудоемкость вычислений требует применения различных приближенных методов. При рассеянии быстрых частиц применимо приближение эйконала [12, 19]. В этом приближении для амплитуды рассеяния  $f_{12}(\mathbf{u}_1|\mathbf{u})$  справедливо выражение [12, 18]

$$f_{12}(\mathbf{u}_1|\mathbf{u}) = -i \frac{\mu u_1}{2\pi\hbar} \int S_{12}(\boldsymbol{\rho}) \exp\left[i \frac{\mu u_1}{\hbar} (\hat{\mathbf{u}} - \hat{\mathbf{u}}_1) \boldsymbol{\rho}\right] d\boldsymbol{\rho}, \quad (16)$$

$$\hat{\mathbf{u}} \equiv \frac{\mathbf{u}}{u}, \quad \hat{\mathbf{u}}_1 \equiv \frac{\mathbf{u}_1}{u_1}, \quad u_1^2 = u^2 + \frac{2\hbar\Omega_R}{\mu},$$

где функция  $S_{12}(\boldsymbol{\rho})$  (вектор  $\boldsymbol{\rho}$  – проекция радиуса-вектора  $\mathbf{r}$ , соединяющего сталкивающие частицы, на плоскость, перпендикулярную скорости  $\mathbf{u}$ ; обычно  $\boldsymbol{\rho}$  интерпретиру-

ется как вектор параметра удара) определяется из системы уравнений

$$\left(\hat{u}\nabla + i\frac{W_{11}}{\hbar u_1}\right)S_{12} = -\frac{i}{\hbar u_1}W_{12}S_{22}\exp\left[i\frac{\mu}{\hbar}(u-u_1)r\hat{u}\right], \quad (17)$$

$$\left(\hat{u}\nabla + i\frac{W_{22}}{\hbar u}\right)S_{22} = -\frac{i}{\hbar u}W_{21}S_{12}\exp\left[i\frac{\mu}{\hbar}(u_1-u)r\hat{u}\right].$$

Как отмечалось выше, приближение эйконала (формулы (16), (17)) применимо при рассеянии быстрых частиц в условиях, когда длина волны де Бройля сталкивающихся частиц много меньше характерного радиуса взаимодействия  $\rho_W$  и матричные элементы  $W_{ij}$  оператора взаимодействия значительно меньше кинетической энергии сталкивающихся частиц [12, 19]:

$$\frac{\hbar}{\mu u} \ll \rho_W, \quad |W_{ij}| \ll \frac{\mu u^2}{2}. \quad (18)$$

Кроме того, передаваемая при столкновениях энергия должна быть относительно мала [19], что означает выполнение условия

$$\hbar\Omega_R \ll \frac{\mu u^2}{2}. \quad (19)$$

Для дальнейших вычислений уравнения (17) удобно рассматривать в системе координат с осью  $z$ , совпадающей с направлением свободного движения (вдоль вектора  $\hat{u}$ ), в этом случае вектор  $\rho$  лежит в плоскости  $xu$  и вектор  $r$  представляется в виде двух компонент:  $r = \rho + \hat{u}z$ . Взаимодействие между частицами будем считать центральным, при этом матричные элементы  $W_{ij}$  зависят только от расстояния  $r = (\rho^2 + z^2)^{1/2}$  между сталкивающимися частицами. В данной системе координат уравнения (17) принимают следующий вид:

$$\left(\frac{d}{dz} + i\frac{W_{11}}{\hbar u_1}\right)S_{12} = -\frac{i}{\hbar u_1}W_{12}S_{22}\exp\left[i\frac{\mu}{\hbar}(u-u_1)z\right], \quad (20)$$

$$\left(\frac{d}{dz} + i\frac{W_{22}}{\hbar u}\right)S_{22} = -\frac{i}{\hbar u}W_{21}S_{12}\exp\left[i\frac{\mu}{\hbar}(u_1-u)z\right].$$

Из выражений (9) видно, что при не слишком высокой интенсивности излучения (11) можно полагать

$$W_{11} = \begin{cases} U_{22}, & \Omega > 0, \\ U_{11}, & \Omega < 0, \end{cases} \quad W_{22} = \begin{cases} U_{11}, & \Omega > 0, \\ U_{22}, & \Omega < 0, \end{cases} \quad (21)$$

так что выполнено условие

$$|W_{12}|, |W_{21}| \ll |W_{11}|, |W_{22}|. \quad (22)$$

Это позволяет искать решение уравнений (20) в виде

$$S_{ij} = S_{ij}^{(0)} + S_{ij}^{(1)}, \quad (23)$$

где  $S_{ij}^{(0)}$  – решение уравнений (20) при  $W_{12} = W_{21} = 0$ , а малые добавки  $S_{ij}^{(1)}$  обусловлены матричными элементами  $W_{12}$  и  $W_{21}$ . Ввиду того, что при  $W_{12} = 0$  столкновительные переходы между уровнями «одетого» атома отсутствуют, следует полагать  $S_{12}^{(0)} = 0$ . Поэтому  $S_{12} = S_{12}^{(1)}$ . Из (20) с учетом (22) и (23) для величины  $S_{12}^{(1)}$  имеем уравнение

$$\left(\frac{d}{dz} + i\frac{W_{11}}{\hbar u_1}\right)S_{12}^{(1)} = -\frac{i}{\hbar u_1}W_{12}S_{22}^{(0)}\exp\left[i\frac{\mu}{\hbar}(u-u_1)z\right], \quad (24)$$

$$S_{22}^{(0)} = \exp\left(-\frac{i}{\hbar u}\int_{-\infty}^z W_{22}dz\right).$$

Решая это линейное неоднородное дифференциальное уравнение, для  $S_{12} = S_{12}^{(1)}$  получаем следующее выражение:

$$S_{12}(\rho) = -\frac{i}{\hbar u_1}\int_{-\infty}^{\infty} W_{12}(\rho, z)\exp[ig(\rho, z)]dz, \quad (25)$$

где

$$g(\rho, z) = -\int_{-\infty}^z \frac{W_{22}(\rho, z')}{\hbar u} dz' - \int_z^{\infty} \frac{W_{11}(\rho, z')}{\hbar u_1} dz' + \frac{\mu}{\hbar}(u-u_1)z. \quad (26)$$

Вычислим интеграл в формуле (25) методом стационарной фазы. Вклад в интеграл дает окрестность точек, в которых функция  $g(\rho, z)$  стационарна, т.е. где производная  $\partial g/\partial z = 0$ . Фаза  $g(\rho, z)$  стационарна в двух точках:  $z_{1,2} = \pm\sqrt{r_0^2 - \rho^2}$ , которым отвечает расстояние  $r_0$  между сталкивающимися частицами. Величина  $r_0$  соответствует точке пересечения термов компаунд-системы и определяется из равенства

$$W_{11}(r_0) - W_{22}(r_0) = \hbar\Omega_R, \quad (27)$$

которое следует из уравнения  $\partial g/\partial z = 0$  при условиях (11), (18), (19) и дополнительном к ним условии

$$\frac{\hbar\Omega_R}{2\mu u^2} \ll \left|\frac{U_{11} - U_{22}}{U_{11} + U_{22}}\right|, \quad (28)$$

означающем не слишком близкое совпадение потенциалов взаимодействия буферных частиц с атомами в основном и возбужденном состояниях. Расчет интеграла в формуле (25) методом стационарной фазы дает

$$S_{12}(\rho) = iG^* \operatorname{sgn}\Omega \sqrt{\frac{2\pi\hbar r_0}{uF}} \times \frac{\exp\{i[\delta_1(\rho) + \alpha_1]\} + \exp\{i[\delta_2(\rho) + \alpha_2]\}}{(r_0^2 - \rho^2)^{1/4}}, \quad (29)$$

где величина

$$F = \left|\frac{d[U_{11}(r) - U_{22}(r)]}{dr}\right|_{r=r_0} \quad (30)$$

характеризует разность наклонов термов компаунд-системы в точке пересечения; функции  $\delta_{1,2}(\rho)$  определяются выражением (верхний и нижний знаки относятся к  $\delta_1(\rho)$  и  $\delta_2(\rho)$  соответственно)

$$\delta_{1,2}(\rho) = -\int_{\mp\sqrt{r_0^2 - \rho^2} \operatorname{sgn}\Omega}^{\infty} \frac{U_{11}(r)}{\hbar u} dz - \int_{\pm\sqrt{r_0^2 - \rho^2} \operatorname{sgn}\Omega}^{\infty} \frac{U_{22}(r)}{\hbar u} dz \mp \frac{|\Omega|}{u}\sqrt{r_0^2 - \rho^2}; \quad (31)$$

$\alpha_{1,2} = \pm\pi/4$  при  $\partial^2 g(z_{1,2})/\partial z^2 \geq 0$ . Здесь и далее при расчетах в силу условий (11), (19) полагаем  $u_1 = u$  и  $\Omega_R = |\Omega|$ .

Рассмотрим теперь формулу (16) для амплитуды рассеяния  $f_{12}(\mathbf{u}_1|\mathbf{u})$ . В той же системе координат, в которой записаны уравнения (20), она принимает следующий вид (полагаем, что вектор  $\hat{\mathbf{u}}_1$  лежит в плоскости  $xz$  и  $u_1 = u$ ):

$$f_{12}(\mathbf{u}_1|\mathbf{u}) = -i \frac{\mu u}{2\pi\hbar} \int_0^\infty \rho S_{12}(\rho) d\rho \times \int_0^{2\pi} \exp(-iq\rho \cos\varphi) d\varphi, \quad q = \frac{\mu u \sin\theta}{\hbar}, \quad (32)$$

где  $\theta$  – угол рассеяния ( $\cos\theta = \hat{\mathbf{u}}_1 \hat{\mathbf{u}}$ ). Используя интегральное представление для функции Бесселя первого рода нулевого порядка  $J_0(x)$  (см., напр., [21]), находим, что в (32) интеграл по  $\varphi$  равен  $2\pi J_0(q\rho)$ . При рассеянии на углы, отвечающие законам классической механики (при  $\theta \gg \theta_d$ , где  $\theta_d \sim \hbar/(\mu u r_0)$  – угол квантовомеханической дифракции), можно считать  $q\rho \gg 1$ . Это условие позволяет воспользоваться асимптотическим разложением [21]

$$J_0(q\rho) \approx \frac{1}{\sqrt{2\pi q\rho}} \{ \exp[i(q\rho - \pi/4)] + \exp[-i(q\rho - \pi/4)] \}. \quad (33)$$

С учетом (29) и (33) формула (32) принимает вид

$$f_{12}(\mathbf{u}_1|\mathbf{u}) = G^* \text{sng}\Omega \sqrt{\frac{\mu r_0}{F \sin\theta}} [J_1^{(+)} + J_1^{(-)} + J_2^{(+)} + J_2^{(-)}],$$

$$J_k^{(\pm)} = \int_0^\infty \frac{\sqrt{\rho} \exp[i\varphi_k^{(\pm)}(\rho)]}{(r_0^2 - \rho^2)^{1/4}} d\rho, \quad (34)$$

$$\varphi_k^{(\pm)}(\rho) = \delta_k(\rho) + \alpha_k \pm (q\rho - \pi/4), \quad k = 1, 2.$$

Вычисляя интеграл  $J_k^{(\pm)}$  в формуле (34) методом стационарной фазы (проводя разложение фазы  $\varphi_k^{(\pm)}(\rho)$  до квадратичного члена), получаем

$$J_k^{(\pm)} = \sqrt{2\pi \rho_k^{(\pm)}} \left| \frac{d^2 \delta_k(\rho_k^{(\pm)})}{d\rho^2} \right|^{-1} \frac{\exp\{i[\varphi_k^{(\pm)}(\rho_k^{(\pm)}) + \beta_k]\}}{[r_0^2 - (\rho_k^{(\pm)})^2]^{1/4}}, \quad (35)$$

где  $\beta_k = \pm\pi/4$  при  $d^2 \delta_k(\rho_k^{(\pm)})/d\rho^2 \geq 0$ , а точки  $\rho_k^{(\pm)}$  стационарной фазы определяются из уравнения

$$\frac{d\varphi_k^{(\pm)}(\rho_k^{(\pm)})}{d\rho} = \frac{d\delta_k(\rho_k^{(\pm)})}{d\rho} \pm q = 0. \quad (36)$$

Для расчета частоты столкновений  $\nu_{21}$  по формуле (7) в нее нужно подставить амплитуду рассеяния (34) с величинами  $J_k^{(\pm)}$  из (35). При этом из-за различия фаз величин  $J_k^{(\pm)}$  в подынтегральном выражении для  $\nu_{21}$  можно пренебречь осциллирующими перекрестными членами, возникающими в квадрате модуля суммы величин  $J_k^{(\pm)}$ . С учетом этого для частоты столкновений  $\nu_{21}$  получаем следующее выражение:

$$\nu_{21} = \frac{2|G|^2 \mu r_0 N_b}{\sqrt{\pi} F \bar{u}^3} \int_0^\infty u^3 \exp\left(-\frac{u^2}{\bar{u}^2}\right) du \times \int \frac{B_1^{(+)} + B_1^{(-)} + B_2^{(+)} + B_2^{(-)}}{\sin\theta} d\hat{\mathbf{u}} d\hat{\mathbf{u}}_1, \quad (37)$$

где

$$B_k^{(\pm)} = \rho_k^{(\pm)} \left| \frac{d^2 \delta_k(\rho_k^{(\pm)})}{d\rho^2} \right| \sqrt{r_0^2 - (\rho_k^{(\pm)})^2}^{-1}, \quad k = 1, 2. \quad (38)$$

Формула (37) допускает некоторое упрощение и для дальнейших расчетов ее удобно представить в виде

$$\nu_{21} = Q K_{oc}, \quad (39)$$

где

$$K_{oc} = \frac{8\pi^2 |G|^2 \hbar r_0^2 N_b}{F} \quad (40)$$

имеет размерность частоты столкновений, а  $Q$  – безразмерная величина, определяемая выражением

$$Q = \frac{2\mu}{\sqrt{\pi} \hbar r_0 \bar{u}^3} \int_0^\infty u^3 \exp\left(-\frac{u^2}{\bar{u}^2}\right) du \times \int_0^\pi [B_1^{(+)} + B_1^{(-)} + B_2^{(+)} + B_2^{(-)}] d\theta. \quad (41)$$

Величина  $K_{oc}$  введена в работе [16] (мы сохраняем принятое в [16] обозначение) и определена как «число оптико-столкновительных переходов в единице объема в единицу времени», рассчитанное в квазиклассическом приближении. По сути она является аналогом частоты столкновений  $\nu_{21}$ , рассчитанной в квазиклассическом приближении. Таким образом, безразмерная величина  $Q$  характеризует степень совпадения квантовомеханического ( $\nu_{21}$ ) и квазиклассического ( $K_{oc}$ ) расчетов частоты оптических столкновений (расчеты совпадают при  $Q = 1$ ).

Для дальнейших расчетов необходимо задать конкретный вид матричных элементов  $U_{ii}(r)$ . Ниже мы рассмотрим случай степенного потенциала взаимодействия сталкивающихся частиц.

#### 4. Степенной потенциал взаимодействия

В случае степенного потенциала взаимодействия матричные элементы  $U_{ii}(r)$  имеют вид

$$U_{ii}(r) = \frac{c_i}{r^l}, \quad i = 1, 2. \quad (42)$$

Мы полагаем, что для атомов в основном ( $i = 1$ ) и в возбужденном ( $i = 2$ ) состояниях показатель степени  $l$  одинаков, а константы взаимодействия  $c_1$  и  $c_2$  различны. Для определенности при расчетах далее будем полагать, что  $l$  – четное число, а  $c_2 > c_1$ .

Расчеты безразмерной величины  $Q$  по формуле (41) с учетом (42) приводят к следующему выражению:

$$Q = \frac{2\epsilon_0}{\sqrt{\pi} l a} [Q_1^{(+)} + Q_1^{(-)} + Q_2^{(+)} + Q_2^{(-)}], \quad (43)$$

$$Q_k^{(\pm)} = \int_0^\infty x^4 \exp(-x^2) dx \int_0^{\pi/2} g_k^{(\pm)} d\theta,$$

$$g_k^{(\pm)} = 2(x_k^{(\pm)})^2 \left| (-1)^k [1 + (x_k^{(\pm)})^2] x_k^{(\pm)} \right.$$

$$\left. \pm \frac{\epsilon_0 x^2 \sin\theta}{a} \sqrt{1 - (x_k^{(\pm)})^2} \right|^{-1}, \quad \epsilon_0 = \mu \bar{u}^2 \left( \frac{c_1 + c_2}{r_0^l} \right)^{-1},$$

$$a = \frac{c_2 - c_1}{c_1 + c_2}, \quad x = \frac{u}{\bar{u}}, \quad x_k^{(\pm)} = \frac{\rho_k^{(\pm)}}{r_0}, \quad k = 1, 2.$$

Здесь безразмерные точки стационарной фазы  $x_k^{(\pm)}$  определяются из уравнения (36), которое для рассматриваемого нами степенного потенциала взаимодействия (42) принимает вид

$$\frac{b(l)}{(x_k^{(\pm)})^l} \left[ \frac{\pi}{2} \pm a \arctan \sqrt{\frac{1}{(x_k^{(\pm)})^2} - 1} \right] \pm a \sqrt{1 - (x_k^{(\pm)})^2} \times \sum_{m=1}^{l/2} \frac{b_m}{(x_k^{(\pm)})^{2m-1}} \pm \varepsilon_0 x^2 \sin \theta = 0, \quad (44)$$

$$b(l) = \frac{l}{\sqrt{\pi}} \frac{\Gamma(\frac{l}{2}(l+1))}{\Gamma(\frac{l}{2}(l+2))},$$

$$b_m = \begin{cases} 1, & m = 1, \\ \frac{(l-1)(l-2)\dots(l+3-2m)}{(l-2)(l-4)\dots(l+2-2m)}, & m \geq 2, \end{cases}$$

где  $\Gamma(x)$  – гамма-функция. В этом уравнении точкам  $x_1^{(\pm)}$  и  $x_2^{(\pm)}$  соответствуют знаки «+» и «-» перед параметром  $a$ , а знаку «±» в  $x_k^{(\pm)}$  отвечает знак «±» перед параметром  $\varepsilon_0$  (точке  $x_1^{(\pm)}$  соответствуют  $+a, \pm\varepsilon_0$ , а точке  $x_2^{(\pm)}$  –  $-a, \pm\varepsilon_0$ ). Из анализа уравнения (44) следует, что в случае  $c_2 > c_1 > 0$  существуют только две точки стационарной фазы –  $x_1^{(-)}$  и  $x_2^{(-)}$ . В этом случае в формуле (43) остаются два интеграла –  $Q_1^{(-)}$  и  $Q_2^{(-)}$ , т. е. интегралы  $Q_1^{(+)}$  и  $Q_2^{(+)}$  отсутствуют.

Интеграл  $Q_2^{(-)}$  при его вычислении по формуле (43) расходится вследствие того, что знаменатель величины  $g_2^{(-)}$  обращается в нуль при некоторых значениях угла рассеяния  $\theta$  и безразмерной скорости  $x$ . Эта особенность обусловлена тем, что в формуле (35) для  $J_2^{(-)}$  в этих точках величина  $d^2\delta_2(\rho_2^{(-)})/d\rho^2$  обращается в нуль. Это означает, что интеграл  $J_2^{(-)}$  (34) в этих точках нужно рассчитывать по иной, нежели (35), формуле. А именно, при расчете интеграла  $J_2^{(-)}$  методом стационарной фазы саму фазу в окрестности стационарной точки нужно разложить в ряд Тейлора до кубического члена (а не до квадратичного члена, как при выводе формулы (35)). Вычисляя интеграл  $J_2^{(-)}$  в формуле (34) методом стационарной фазы, проводя разложение фазы  $\varphi_2^{(-)}(\rho)$  до кубического члена (квадратичным членом в этом разложении пренебрегаем ввиду его малости вблизи критических точек), получаем

$$J_2^{(-)} = \frac{(4/3)^{1/6} \Gamma(1/3)}{|d^3\delta_2(\rho_2^{(-)})/d\rho^3|^{1/3}} \frac{\sqrt{\rho_2^{(-)} \exp[i\varphi_2^{(-)}(\rho_2^{(-)})]}}{[r_0^2 - (\rho_2^{(-)})^2]^{1/4}}, \quad (45)$$

где точка  $\rho_2^{(-)}$  стационарной фазы по-прежнему определяется из (36). Замена формулы (35) формулой (45) означает, что в критических точках  $\theta, x$  функцию  $g_2^{(-)}$  (43) следует заменить функцией  $g_{2N}^{(-)}$ , определяемой выражением

$$g_{2N}^{(-)} = \frac{1}{\pi} \left(\frac{4}{3}\right)^{1/3} \Gamma^2\left(\frac{1}{3}\right) \left(\frac{l a k_0}{\varepsilon_0 x}\right)^{1/3} \frac{(x_2^{(-)})^{5/3} \sqrt{1 - (x_2^{(-)})^2}}{|H_2^{(-)}|^{2/3}}, \quad (46)$$

$$k_0 = \frac{\mu \bar{u} r_0}{\hbar}, \quad H_2^{(-)} = 2(l+2)(x_2^{(-)})^6 - (2l+5)(x_2^{(-)})^4 + (l+3)(x_2^{(-)})^2 - l + \frac{(l+1)\varepsilon_0 x^2 \sin \theta}{a x_2^{(-)}} [1 - (x_2^{(-)})^2]^{3/2}.$$

При численном расчете интеграла  $Q_2^{(-)}$  мы будем заменять функцию  $g_2^{(-)}$  функцией  $g_{2N}^{(-)}$  в том случае, если выполнено условие  $g_2^{(-)} > g_{2N}^{(-)}$ .

На рис.2 показаны результаты численных расчетов величины  $Q = v_{21}/K_{oc}$  по формулам (43), (44), (46) в зависимости от отношения констант взаимодействия  $c_1/c_2$  при различных параметрах  $l$  для степенного потенциала взаимодействия и при различных значениях параметра  $\varepsilon_0$ , равного отношению тепловой энергии сталкивающихся частиц к характерной величине потенциала взаимодействия. Численный анализ показывает, что отношение  $v_{21}/K_{oc}$  мало чувствительно к величине параметра  $k_0$  и поэтому расчеты проводились только при одном значении  $k_0 = 45$ , характерном, например, для системы Na + He при температуре  $T = 580$  К и  $r_0 = 5 \times 10^{-8}$  см. Значения  $\varepsilon_0$  выбирались достаточно большими для того, чтобы было выполнено

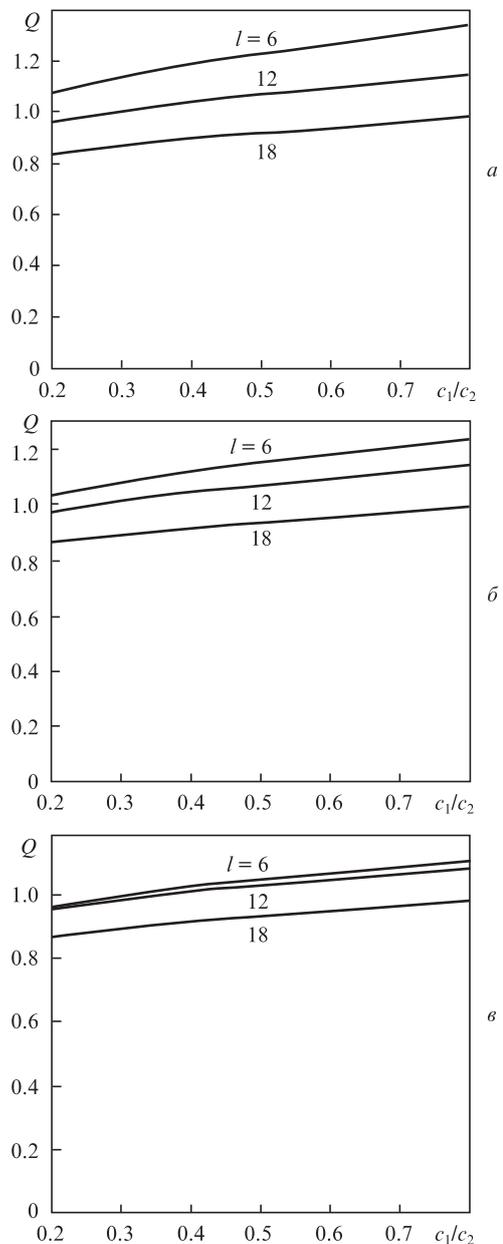


Рис.2. Зависимости величины  $Q = v_{21}/K_{oc}$  от отношения констант взаимодействия  $c_1/c_2$  при различных параметрах  $l$  для степенного потенциала взаимодействия и при  $k_0 = 45, \varepsilon_0 = 500$  (а), 1000 (б) и 2000 (е).

условие применимости эйконального приближения  $|U_{11}|, |U_{22}| \ll \mu^2/2$  при скоростях, значительно меньших тепловой скорости (это условие необходимо для корректности подынтегрального выражения в формуле для  $Q$  (43) при скоростях  $u \ll \bar{u}$ ). Из рис.2 видно, что отношение  $v_{21}/K_{oc}$  близко к единице и медленно растет с увеличением отношения  $c_1/c_2$ . Для степенных потенциалов с  $l = 6, 12$  и  $18$  отличие отношения  $v_{21}/K_{oc}$  от единицы уменьшается с ростом параметра  $\varepsilon_0$  и при  $\varepsilon_0 = 2000$  составляет около 10%.

Итак, квантовомеханический ( $v_{21}$ ) и квазиклассический ( $K_{oc}$ ) расчеты частоты оптических столкновений дают близкие результаты: отношение  $v_{21}/K_{oc}$  близко к единице при выполнении условия применимости эйконального приближения (при достаточно больших параметрах  $\varepsilon_0$ ).

## 5. Результаты и выводы

Таким образом, нами проведен квантовомеханический расчет частоты столкновений  $v_{21}$ , которая входит в кинетические уравнения для матрицы плотности, описывающие нелинейные эффекты в крыльях спектральных линий. Частота столкновений сложным образом зависит от потенциала взаимодействия сталкивающихся частиц и от характеристик излучения (интенсивности и отстройки частоты излучения). Численный анализ показал, что квантовомеханический расчет частоты столкновений в приближении эйконала дает результат, близкий к тому, который уже известен из квазиклассической теории крыла спектральной линии [16]. А именно, частота столкновений  $v_{21}$  оказалась близкой к величине  $K_{oc}$ , введенной в работе [16] и определенной как «число оптико-столкновительных переходов в единице объема в единицу времени» (см. рис.2,б).

Проведенный анализ позволяет заключить, что в рассматриваемых условиях для частоты столкновений  $v_{21}$  в кинетических уравнениях для матрицы плотности, полученных в работе [13] и описывающих нелинейные эффекты в крыльях спектральных линий, с небольшой погрешностью можно полагать

$$v_{21} = K_{oc}. \quad (47)$$

Это соотношение позволяет представить частоту столкновений  $v_{21}$  в таком же виде, в каком была представлена частота  $K_{oc}$  в работах [14–16]:

$$v_{21} = \frac{2|G|^2}{\Omega^2} \Gamma_{oc}(\Omega). \quad (48)$$

Величина  $\Gamma_{oc}(\Omega)$  входит в модифицированную формулу Лоренца [15, 16], описывающую весь контур спектральной линии, включая далекие крылья. В общем случае  $\Gamma_{oc}(\Omega)$  зависит от отстройки частоты  $\Omega$  и интенсивности излучения (от параметра  $|G|$ ). В случае не слишком сильного поля (11) зависимость  $\Gamma_{oc}(\Omega)$  от интенсивности излучения исчезает, остается зависимость только от отстройки частоты [16]. При небольшой отстройке частоты излучения ( $|\Omega| \ll \Omega_w$ , где  $\Omega_w$  – вайскопфовская частота [16]) величина  $\Gamma_{oc}(\Omega)$  равна ударной полуширине линии поглощения  $\Gamma$  [16], а при большой отстройке ( $|\Omega| \gg \Omega_w$ ) она может быть как существенно больше, так и существенно

меньше  $\Gamma$  [16]. Частота столкновений  $v_{21}$  уменьшается с ростом модуля отстройки  $|\Omega|$  [16].

В стационарных условиях из (15) с учетом соотношения (48) и условия нормировки (13) получаем известное выражение [10, 22] для разности населенностей возбужденного (|2>) и основного (|1>) уровней:

$$\rho_{22} - \rho_{11} = N \frac{\kappa \{1 - \exp[-\hbar|\Omega|/(k_B T)]\} \operatorname{sgn} \Omega - 1}{1 + \kappa \{1 + \exp[-\hbar|\Omega|/(k_B T)]\}}, \quad (49)$$

$$\kappa = \frac{2|G|^2 \Gamma_{oc}(\Omega)}{A \Omega^2}.$$

Величина  $\kappa$  имеет смысл параметра насыщения для перехода  $|2\rangle - |1\rangle$  (при  $|\Omega| \gg \Gamma$ ). Из (49) следует, что при достаточно высокой интенсивности возбуждающего излучения (при  $\kappa > 1$ ) и при положительной отстройке частоты излучения ( $\Omega > 0$ ) на переходе  $|2\rangle - |1\rangle$  возникает инверсия населенностей. Как уже говорилось во Введении, этот эффект зарегистрирован экспериментально в виде генерации когерентного излучения на резонансном переходе атомов натрия при воздействии излучения накачки на «синее» крыло линии поглощения [6, 8–10].

Настоящая работа выполнена при финансовой поддержке программы ОФН РАН «Фундаментальная оптическая спектроскопия и её приложения» (проект 9.5) и гранта Президента РФ по государственной поддержке ведущих научных школ РФ (№ НШ-4339.2010.2).

- Hedges R.E.M., Drummond D.L., Gallagher A. *Phys. Rev. A*, **6**, 1519 (1972).
- Галлагер А. В кн.: *Экимерные лазеры*. Под ред. Ч.Роудза (М.: Мир, 1981, с. 173).
- Земцов Ю.К., Старостин А.Н. *ЖЭТФ*, **103**, 345 (1993).
- Земцов Ю.К., Сечин А.Ю., Старостин А.Н. *ЖЭТФ*, **110**, 1654 (1996).
- Земцов Ю.К., Сечин А.Ю., Старостин А.Н. *ЖЭТФ*, **114**, 135 (1998).
- Марков Р.В., Плеханов А.И., Шалагин А.М. *ЖЭТФ*, **120**, 1185 (2001).
- Шалагин А.М. *Письма в ЖЭТФ*, **75**, 301 (2002).
- Markov R.V., Plekhanov A.I., Shalagin A.M. *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 213601 (2002).
- Markov R.V., Plekhanov A.I., Shalagin A.M. *Acta Phys. Polonica A*, **101**, 77 (2002).
- Марков Р.В., Пархоменко А.И., Плеханов А.И., Шалагин А.М. *ЖЭТФ*, **136**, 211 (2009).
- Алексеев В.А., Андреева Т.Л., Собельман И.И. *ЖЭТФ*, **62**, 614 (1972).
- Раутиан С.Г., Смирнов Г.И., Шалагин А.М. *Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул* (Новосибирск: Наука, 1979).
- Пархоменко А.И., Шалагин А.М. *ЖЭТФ*, **140** (5), 879 (2011).
- Лисица В.С., Яковленко С.И. *ЖЭТФ*, **68**, 479 (1975).
- Бакаев Д.С., Вдовин Ю.А., Ермаченко В.М., Яковленко С.И. *ЖЭТФ*, **83**, 1297 (1982).
- Яковленко С.И. *УФН*, **136**, 593 (1982).
- Cohen-Tannoudji C., Dupont-Roc J., Grynberg G. *Atom – Photon Interactions: Basic Processes and Applications* (Weinheim: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2004).
- Rautian S.G., Shalagin A.M. *Kinetic Problems of Nonlinear Spectroscopy* (Amsterdam, New York: Elsevier Science Publishing Company, 1991).
- Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. *Квантовая механика* (М.: Наука, 1989).
- Физическая энциклопедия* (М.: Советская энциклопедия, 1988, т. 1, с. 585).
- Справочник по специальным функциям*. Под ред. М.Абрамовица, И.Стигана (М.: Наука, 1979).
- Пархоменко А.И., Шалагин А.М. *Квантовая электроника*, **39**, 1143 (2009).