Письма в ЖЭТФ, том 64, вып.9, стр.599 - 603 © 1996г. 10 ноября

НЕЛИНЕЙНЫЙ КОЛЛАПС ОДИНОЧНОЙ, ОДНОРОДНО УШИРЕННОЙ СПЕКТРАЛЬНОЙ ЛИНИИ ВСЛЕДСТВИЕ КОГЕРЕНТНЫХ СТОЛКНОВЕНИЙ

С.Г.Раутиан

Институт автоматики и электрометрии Сибирского отделения РАН
630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 30 сентября 1996 г.

Столкновительный обмен между недиагональным элементом матрицы плотности и ему комплексно сопряженной величиной приводит к коллапсу однородноуширенной спектральной линии. Рассмотрен случай, когда такой обмен обусловлен поляризацией термостата из-за двухквантового поглощения.

PACS: 32.70.Jz, 33.70.Jg

Зависимость ширины спектральной линии в газокинетических условиях от интенсивности поглощаемого монохроматического поля может быть связана с несколькими различными причинами. Простейшая из них отражает частотную селективность полевого выравнивания разности заселенности комбинирующих уровней (ширина насыщения [1]). Более тонкие эффекты возникают при мощностях излучения, для которых с заметной вероятностью индуцируются радиационные переходы в течение времени столкновения [2,3]. В таких условиях смешиваются рассеивающие потенциалы в комбинирующих состояниях. Фанченко указал на зависимость релаксационных констант от интенсивности из-за полевого расщепления уровней [4]. Третий тип явлений обусловлен тем, что мощное излучение может поляризовать возмущающий газ, лишить его статистической равновесности [5,6] (уширение как собственным давлением, так и буферным газом). Одно из такого рода явлений разбирается ниже. Возможно, именно оно привело к сужению линии поглощения водяных паров в поле излучения рубинового лазера [7], не получившему до сих пор удовлетворительной интерпретации.

Существо дела можно разъяснить следующими соображениями. В модели релаксационных констант кинетическое уравнение для недиагонального элемента ρ_{mn} одночастичной матрицы плотности ρ обычно записывают в виде (см., например, [8,9])

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \mathbf{v}\nabla\right)\rho_{mn} = -(\Gamma + i\Delta)\rho_{mn} - i[V,\rho]_{mn}, \qquad (1)$$

где $\mathbf{v}$ – скорость атома, Γ и Δ – ширина и сдвиг спектральной линии, V – оператор взаимодействия атома с электромагнитным полем, m и n – квантовые числа комбинирующих стационарных состояний. Релаксационная часть уравнения (1) для ρ_{mn} представлена членом $(\Gamma + i\Delta)\rho_{mn}$, пропорциональным также ρ_{mn}. В рамках сугубой феноменологии можно ввести и член, пропорциональный ρ_{nm}:

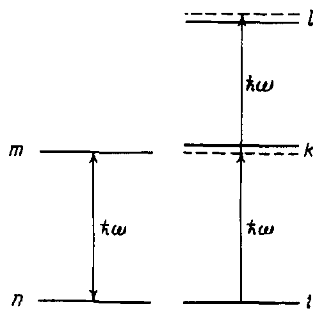
$$(\partial/\partial t + \mathbf{v}\nabla + \Gamma + i\Delta)\rho_{mn} - \tilde{\nu}\rho_{nm} = -i[V,\rho]_{mn}. \qquad (2)$$

Условия, при которых введение члена $\tilde{\nu}\rho_{nm}$ оказывается оправданным, рассматриваются ниже. Сейчас же обсудим соответствующие кинетические последствия.

Поскольку $\rho_{nm} = \rho^*_{mn}$, для ρ_{nm} находим

$$(\partial/\partial t + \mathbf{v}\nabla + \Gamma - i\Delta)\rho_{nm} - \tilde{\nu}^*\rho_{mn} = i[V, \rho]^*_{mn}. \tag{3}$$

Уравнения (2) и (3) составляют систему связанных уравнений относительно ρ_{mn} и ρ_{nm} (коэффициент связи $\tilde{\nu}$). Формально аналогичная система описывает задачу о столкновительном коллапсе спектрального дублета, когда рассматривается обмен поляризациями между двумя переходами $m-n$ и $k-l$ с близкими боровскими частотами ω_{mn} и ω_{kl} (см., например, [8-10]). В результате обмена поляризациями ρ_{mn} и ρ_{kl} компоненты спектрального дублета ω_{mn} и ω_{kl} "интерферируют" и при определенных условиях сливаются (коллапсируют) в одиночную линию. В отличие от коллапса дублета, в нашей задаче происходит обмен между ρ_{mn} и ρ_{nm} и также возникают близкие по духу интерференционные явления, но в пределах контура одиночной, однородно уширенной спектральной линии, связанной с одиночным переходом между двумя уровнями.



Обмен между ρ_{mn} и ρ_{nm} можно интерпретировать как различие скоростей релаксации вещественной и мнимой частей элемента ρ_{mn}. Действительно, отделяя в уравнении (2) вещественную и мнимую части, находим

$$\begin{gathered}(\partial/\partial t + \mathbf{v}\nabla + \Gamma - \tilde{\nu}')\rho'_{mn} - (\Delta + \tilde{\nu}'')\rho''_{mn} = -\mathrm{Re}(i[V, \rho]_{mn}),\\ (\partial/\partial t + \mathbf{v}\nabla + \Gamma + \tilde{\nu}')\rho''_{mn} + (\Delta - \tilde{\nu}'')\rho'_{mn} = -\mathrm{Im}(i[V, \rho]_{mn}),\\ \rho_{mn} = \rho'_{mn} + i\rho''_{mn}, \qquad \tilde{\nu} = \tilde{\nu}' + i\tilde{\nu}''.\end{gathered} \tag{4}$$

При $\Delta = \tilde{\nu}'' = 0$ величины ρ'_{mn} и ρ''_{mn} релаксируют независимо с различными скоростями $\Gamma - \tilde{\nu}'$ и $\Gamma + \tilde{\nu}'$, соответственно. Если $\Delta \neq 0$, $\tilde{\nu}'' \neq 0$, то ρ'_{mn} и ρ''_{mn} релаксируют не независимо, но и в данном случае вещественные части корней характеристического уравнения будут отличаться.

Прямое использование результатов теории коллапса [8-10] невозможно, поскольку в нашем случае величина $\tilde{\nu}$ зависит от t и $\mathbf{r}$. Действительно, общая теория интеграла столкновений позволяет написать соотношение

$$\tilde{\nu} = \sum_{ikl} \langle f(mk\mathbf{u}|nl\mathbf{u}_1) f^*(nk\mathbf{u}|mi\mathbf{u}_1)\rho_{bli}(\mathbf{v} - \mathbf{u}_1)\rangle \times$$

$$\times \exp[i(2\omega_{mn} - \omega_{li})t]. \qquad (5)$$

Здесь i, k, l и $\rho_{bli}(\mathrm{v} - \mathrm{u}_1)$ – квантовые числа стационарных состояний и элемент матрицы плотности возмущающей частицы, u и u_1 – относительные скорости после и до столкновения, $f(mk\mathrm{u}|nl\mathrm{u}_1)$ – амплитуда рассеяния. Угловые скобки обозначают усреднение по u и u_1 с некоторыми весами, явный вид которых для нас сейчас не важен.

Недиагональные элементы $\rho_{bli}(\mathrm{v} - \mathrm{u}_1)$ представляют собой осциллирующие в пространстве функции, периоды их колебаний равны длине волны излучения, возбуждающего ρ_b. Поэтому $\tilde{\nu}$ также является быстроосциллирующей функцией координат, и на первый взгляд может показаться, что для макроскопических объемов влияние подобных когерентных столкновений в значительной степени "высредняется". Однако благодаря "когерентности столкновений" возможен их резонанс с ρ_{mn} и член $\tilde{\nu}\rho_{nm}$ оказывается важным.

Не будем останавливаться на общем анализе соотношения (5) и разберем один простой, но показательный частный случай. Пусть газ взаимодействует с монохроматической плоской волной $E\exp[i(\mathbf{kr} - \omega t)]$ (E, ω и $\mathbf{k}$ – амплитуда, частота и волновой вектор), квазирезонансной переходу $m - n$. В данных условиях, очевидно,

$$\rho_{mn} = \bar{\rho}\exp[i(\mathbf{kr} - \Omega t)], \qquad \Omega = \omega - \omega_{mn}. \qquad (6)$$

Допустим, далее, что возмущающая частица также квазирезонансно взаимодействует с той же волной, а $\rho_{bli}(\mathrm{v} - \mathrm{u}_1)$ описывает двухквантовый переход $i \to l$ через промежуточное состояние k, как это иллюстрирует рисунок. Тогда в первом неисчезающем приближении по E

$$\rho_{bli}(\mathrm{v} - \mathrm{u}_1) = \bar{\rho}_b\exp[-i(2\omega - \omega_{li})t + 2i\mathbf{kr}], \qquad (7)$$

$$\bar{\rho}_b = \frac{G_{lk}G_{ki}\rho_{bli}(\mathrm{v} - \mathrm{u}_1)}{(2\omega - \omega_{li} + i\Gamma_{li})(\omega - \omega_{ki} + i\Gamma_{ki})}; \qquad G_{rs} = \frac{d_{rs}E}{2\hbar}, \qquad (8)$$
$$r, \quad s = l, \quad k, \quad i,$$

где d_{rs} и Γ_{rs} – матричные элементы дипольного момента и константы релаксации для соответствующих переходов. Сдвиги линий ради простоты не приняты во внимание. Итак, $\tilde{\nu}$ действительно быстро осциллирует: $\tilde{\nu} = \bar{\nu}\exp[i2(\mathbf{kr} - \Omega t)]$, причем $\bar{\nu}$ не зависит от t, r. Однако из соотношений (5)-(7) следует, что произведение

$$\tilde{\nu}\rho_{nm} = \bar{\nu}\bar{\rho}^*\exp[-i(\Omega t - \mathbf{kr})] \qquad (9)$$

зависит от t и r по тому же закону, что и ρ_{mn}. В итоге приходим к системе уравнений с постоянными коэффициентами:

$$(\Gamma - i\Omega')\bar{\rho} - \bar{\nu}\bar{\rho}^* = iG_{mn}(\rho_{nn} - \rho_{mm}),$$

$$-\bar{\nu}^*\bar{\rho} + (\Gamma + i\Omega')\bar{\rho}^* = -iG^*_{mn}(\rho_{nn} - \rho_{mm}), \qquad \Omega' = \Omega - \Delta - \mathbf{kv}. \qquad (10)$$

Обмен между ρ_{mn} и ρ_{nm} в рассматриваемом случае представляет собой нелинейный эффект ($\bar{\nu} \propto E^2$). Поэтому необходимо принять во внимание и эффект насыщения на переходе $m - n$, что достигается с помощью уравнений для заселенностей

$$\Gamma_j\rho_{jj} = \mp 2\mathrm{Re}(iG_{nm}\rho_{mn}) + \Gamma_j N_j, \qquad j = m, n, \qquad (11)$$

где Γ_j и N_j – скорость затухания уровня j и его заселенность в отсутствие поля. Из системы уравнений (10), (11) находим

$$\bar{\rho} = i\frac{(\Gamma + \Omega')G_{mn} - \bar{\nu}G_{nm}}{\gamma^2 + \Omega^{12}}(N_n - N_m),$$

$$\gamma^2 = \Gamma^2 + 2\Gamma\tau_{mn}|G_{mn}|^2 - |\bar{\nu}|^2 - 2\tau_{mn}\mathrm{Re}(\bar{\nu}G_{nm}^2), \qquad \tau_{mn} = \Gamma_m^{-1} + \Gamma_n^{-1}. \tag{12}$$

Мнимая часть $\bar{\rho}$ определяет, как известно, поглощение, а вещественная – рефракцию. Соотношение (12) для $\bar{\rho}$ по общей своей структуре совпадает с формулой Карплюса – Швингера [1], однако видны и характерные различия. Зависимость ширины γ и амплитуды $\bar{\rho}$ от мощности поля существенно иная: члены $\Gamma^2 + 2\Gamma\tau_{mn}|G_{mn}|^2$ представляют собой квадрат "обычной" насыщенной полуширины, по сравнению с которой γ^2 уменьшена за счет процесса обмена. Поскольку $\bar{\nu} \infty E^2$, вклад обмена оказывается пропорциональным $|E|^4$, то есть он может проявляться только при заметном насыщении. Второе важное отличие касается отношения вещественной и мнимой частей $\bar{\rho}$:

$$\bar{\rho}'/\bar{\rho}'' = (\Omega' - \bar{\nu}'')/(\Gamma - \bar{\nu}'), \qquad \bar{\nu} = \bar{\nu}' + i\bar{\nu}''. \tag{13}$$

Отношение $\bar{\rho}'/\bar{\rho}''$ зависит от мощности излучения, если $\bar{\nu} \neq 0$. Этот результат физически понятен, ибо обмен ρ_{mn} и ρ_{nm} создает различие в скоростях релаксации $\bar{\rho}'$ и $\bar{\rho}''$ (см. формулу (4)).

Из соотношения (12) следует, что $\bar{\nu}''$ обусловливает появление в $\bar{\rho}'$ составляющей, симметричной по частоте относительно точки $\Omega' = 0$. Следовательно, обмен между ρ_{mn} и ρ_{nm} изменяет форму спектральной кривой дисперсии (показателя преломления), причем это изменение увеличивается с ростом интенсивности. Контур же линии поглощения (мнимая часть $\bar{\rho}''$) сохраняет лорентцеву форму.

Рассмотренный эффект полевой зависимости релаксации регулируется параметрами типа $G_{ij}\tau$, где τ – эффективное время взаимодействия ($\sqrt{\tau_{mn}/\Gamma}$ и т.д.). Такого рода параметры задают и насыщение. В работах [2,3] разобран иной эффект – сужение одиночной спектральной линии вследствие полевого смешивания рассеивающих потенциалов в комбинирующих состояниях. В этом случае определяющим параметром служит $G_{mn}\tau_c$, где τ_c – время столкновения, которое на несколько порядков меньше, чем τ_{mn}. Поэтому обмен, рассмотренный в данной статье, приводит к значительно более сильным результатам, чем смешивание потенциалов. Параметр эффекта Фанченко [4] есть $G_{mn}/\sqrt{\Gamma\omega_{mn}}$, и он также значительно меньше параметра насыщения.

Как уже упоминалось, в экспериментах [7] наблюдалось сужение линии поглощения паров воды в поле мощного импульса рубинового лазера. Гипотетическое объяснение этого сужения связывалось в [7] с эффектом смешивания потенциалов [2]. Вместе с тем, диапазон использованных мощностей соответствовал не столько условию $G_{mn}\tau_c \sim 1$, сколько насыщению. Поэтому, быть может, результаты [7] обусловлены рассмотренным здесь эффектом обмена.

Возвращаясь к общей постановке вопроса, можно сказать, что разобранный пример достаточно наглядно демонстрирует возможность сильного воздействия "когерентного термостата" на кинетические процессы. Именно в этом смысле нужно понимать примененный термин "когерентные столкновения". Рассмотренная задача демонстрирует, что "когерентность столкновений" может проявляться уже при сравнительно небольших интенсивностях излучения.

Работа выполнена при поддержке Международного научного фонда (грант 86_р).

1. R.Karplus and J.A.Shwinger, Phys. Rev. **73**, 1020 (1948).
2. Э.Г.Пестов, С.Г.Раутиан, ЖЭТФ **64**, 2032 (1973).
3. Э.Г.Пестов, Труды ФИАН **187**, 60 (1988).
4. С.С.Фанченко, ЖЭТФ **85**, 1936 (1983).
5. С.Г.Раутиан, А.М.Шалагин, Квантовая электроника **3**, 757 (1976).
6. С.Г.Раутиан, ЖЭТФ **103**, 785 (1993).
7. В.Е.Зуев, В.П.Лопасов, Ю.Н.Пономарев, ДАН СССР **231**, (5), 1106 (1976).
8. С.Г.Раутиан, Г.И.Смирнов, А.М.Шалагин, *Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул*, Новосибирск: Наука, 1979.
9. S.G.Rautian and A.M.Shalagin, *Kinetics problems of non-linear spectroscopy*, Amsterdam-Oxford, North-Holland Publ., 1991.
10. Л.А.Вайнштейн, И.И.Собельман, Е.А.Юков, *Возбуждение атомов и уширение спектральных линий*, М.: Наука, 1979.