ЖЭТФ, 2005, том 128, вып. 5 (11), стр. 883–892

ЗАВИСИМОСТЬ ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНЫХ СЕЧЕНИЙ ПРОЦЕССА РАДИАЦИОННО-СТОЛКНОВИТЕЛЬНОГО ВОЗБУЖДЕНИЯ МЕТАСТАБИЛЬНЫХ СОСТОЯНИЙ АТОМОВ ОТ ПОЛЯРИЗАЦИИ ИЗЛУЧЕНИЯ

Е. А. Чесноков [*]

Институт физики Санкт-Петербургского государственного университета
198904, Петергоф, Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 6 июня 2005 г.

Рассчитаны полные и дифференциальные сечения процесса радиационно-столкновительного возбуждения метастабильного 2^1S-состояния атомов He при столкновениях с атомами Ne в поле внешнего излучения различной частоты и поляризации. Расчеты выполнены для тепловой энергии столкновения $E = 10^{-3}$ ат. ед. и интенсивности света $I = 1$ МВт/см^2, что соответствует однократному поглощению фотона квазимолекулой в ходе столкновения. Показано, что как дифференциальные, так и полные сечения сильно зависят от относительной ориентации вектора поляризации излучения и вектора начальной относительной скорости сталкивающихся атомов. Исследована азимутальная асимметрия рассеяния, связанная с ориентацией углового момента поглощаемого фотона.

PACS: 34.50.-s

1. ВВЕДЕНИЕ

В последние годы значительный интерес был проявлен к исследованию угловых распределений атомов, формируемых в ходе экспериментов с пересекающимися атомными пучками в поле лазерного излучения. В частности, на примере реакции возбуждения атомов Na при столкновениях с атомами инертных газов в поле квазирезонансного лазерного излучения было показано, что исследование изменения структуры дифференциальных сечений в зависимости от частоты, поляризации излучения и энергии столкновения позволяет судить о геометрии радиационно-столкновительных процессов [1, 2], анализировать неадиабатические переходы в квазимолекуле [3], а также с достаточно высокой точностью воспроизводить потенциалы взаимодействия атомов в основном и возбужденном состояниях [4, 5].

В то же время дифференциальные сечения радиационно-столкновительных процессов, ведущих к столкновительно-индуцированному радиационному возбуждению метастабильных состояний одного из сталкивающихся атомов, остаются практически неисследованными. Сложность экспериментального наблюдения таких процессов связана с малостью дипольного момента перехода, индуцированного взаимодействием атомов, и, соответственно, с малостью сечений радиационно-столкновительного возбуждения. Тем не менее можно отметить ряд работ по экспериментальному наблюдению спектральных распределений, формируемых в ходе данного рода процессов [6–9]. Попытки создания адекватного теоретического описания также встречают на своем пути ряд трудностей. В частности, широко используемый метод сильной связи каналов (см., например, [2]) оказывается малоэффективным при отсутствии хороших исходных данных о потенциалах взаимодействия атомов и дипольном моменте перехода. В то же время определение последних представляет собой сложную квантовохимическую задачу, особенно в случае взаимодействия двух компактных атомов в ^1S-состояниях, поскольку требует совместного учета движения всех электронов в квазимолекуле. Другой часто используемый при анализе оптических столкновений метод основан на приближении Кондона. Однако, как было показано в ра-

[*] E-mail: tchesn@ec8174.spb.edu

боте [10], кондоновское приближение справедливо лишь в случае плавно меняющегося взаимодействия между состояниями квазимолекулы. В случае же взаимодействия, которое сильно зависит от межъядерного расстояния R, что соответствует специфике столкновительно-индуцированных радиационных переходов (для которых дипольный момент перехода при больших R равен нулю), область применимости кондоновского приближения весьма ограничена.

В работе [11] на основе приводящей к замкнутому аналитическому выражению для амплитуды рассеяния модели экспоненциально зависящего от R взаимодействия двух кулоновских термов [12] был выполнен оценочный расчет дифференциальных сечений реакции столкновительно-индуцированного излучения,

$$\mathrm{He}(1^1S) + \mathrm{Ne} + \hbar\omega \leftrightarrow \mathrm{He}(2^1S) + \mathrm{Ne}. \tag{1}$$

Хотя полученные результаты правильно воспроизводят некоторые общие закономерности поведения дифференциальных сечений, использование кулоновских аппроксимаций для потенциалов основного и возбужденного состояний приводит к заведомо неверной количественной оценке сечений, а также делает невозможным воспроизведение ряда особенностей дифференциальных сечений, связанных с короткодействующим характером взаимодействия атомов в основном состоянии. Кроме того, расчет [11] был выполнен в приближении одинакового центробежного потенциала в обоих каналах реакции, что, по сути дела, означает пренебрежение угловым моментом фотона и исключает возможность исследования эффектов, связанных с поляризацией излучения.

Цель настоящей работы состоит в расчете и последующем анализе структуры дифференциальных и полных сечений реакции (1) с поглощением в зависимости от поляризации излучения. Расчет основан на достаточно точных [10] экспоненциальных аппроксимациях для радиационной ширины и потенциалов взаимодействия атомов в основном и возбужденном $^1\Sigma$-состояниях и предполагает корректный учет углового момента фотона.

Механизм реакции (1) подробно описан в работе [10]. Экспоненциальные аппроксимации для потенциалов основного $|^1\Sigma, 1^1S\rangle$- и возбужденного $|^1\Sigma, 2^1S\rangle$-состояний квазимолекулы в области энергий 10–1000 см$^{-1}$, основанные на данных из работ [13, 14], имеют вид

$$U_g(R) = 2594\exp(-3.439R),$$
$$U_e(R) = 0.404\exp(-0.917R).$$

Радиационная ширина возбужденного $|^1\Sigma, 2^1S\rangle$-состояния квазимолекулы [15] возникает по мере сближения атомов вследствие перемешивания волновых функций метастабильного 2^1S- и резонансного 2^1P-состояний атомов He. Экспоненциальная аппроксимация для ширины имеет вид $\Gamma(R) = 4.84\cdot10^{-5}\exp(-1.84R)$. Здесь и далее, если не оговорено особо, используется атомная система единиц.

2. ТЕОРИЯ РАДИАЦИОННОГО ПЕРЕХОДА МЕЖДУ ДВУМЯ $^1\Sigma$-ТЕРМАМИ

2.1. Квантовая теория

При малых интенсивностях излучения, когда вероятность радиационного перехода как на каждом этапе, так и в ходе всего столкновения гораздо меньше единицы, амплитуда и дифференциальное сечение радиационно-столкновительного процесса могут быть получены в рамках метода искаженных волн [16]:

$$f_{fi}(\mathbf{k}_f, \mathbf{k}_i, \mathbf{e}) = -\frac{\mu}{2\pi}\int \Psi_{\mathbf{k}_f}^{(-)^*}(\mathbf{R})V(\mathbf{R})\Psi_{\mathbf{k}_i}^{(+)}(\mathbf{R})\,d^3R, \tag{2}$$

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{k_f}{k_i}\left|f_{fi}(\mathbf{k}_f, \mathbf{k}_i, \mathbf{e})\right|^2, \tag{3}$$

где μ — приведенная масса сталкивающихся атомов, $\mathbf{k}_{i,f}$ — импульсы относительного движения атомов до и после столкновения, $\Psi_{\mathbf{k}_i}^{(+)}(\mathbf{R})$ и $\Psi_{\mathbf{k}_f}^{(-)}(\mathbf{R}_f)$ — волновые функции относительного движения атомов в начальном и конечном каналах, удовлетворяющие известным асимптотикам [17].

Поскольку дипольный момент перехода между двумя $^1\Sigma$-состояниями квазимолекулы параллелен направлению межъядерной оси $\mathbf{d}_{fi} = d(R)\hat{\mathbf{R}}$, где $\hat{\mathbf{R}}$ — единичный вектор в направлении межъядерной оси, матричный элемент дипольного взаимодействия квазимолекулы с внешним электромагнитным полем

$$\mathbf{E} = E_0\,\mathrm{Re}\left[\mathbf{e}\exp(-i\omega t)\right]$$

интенсивности $I = cE_0^2/8\pi$ может быть представлен в виде произведения радиальной и угловой частей взаимодействия:

$$V(\mathbf{R}) = V(\hat{\mathbf{R}})V(R), \tag{4}$$

где

$$V(\hat{\mathbf{R}}) = -\mathbf{e}\cdot\hat{\mathbf{R}}, \quad V(R) = (E_0/2)\,d(R).$$

Разложение функций $\Psi^{(+)}_{\mathbf{k}_i}(\mathbf{R})$ и $\Psi^{(-)}_{\mathbf{k}_f}(\mathbf{R})$ по парциальным волнам позволяет выразить амплитуду рассеяния через элементы S-матрицы рассеяния:

$$f(\theta,\varphi,\mathbf{e}) = \mathbf{e}\cdot\mathbf{f}(\theta,\varphi), \quad \mathbf{f}(\theta,\varphi) = \sum_{\nu} \mathbf{e}_\nu f_\nu(\theta,\varphi), \tag{5}$$

где углы θ, φ задают направление вектора конечного относительного импульса сталкивающихся атомов $\mathbf{k}_f$ (ось z полагаем направленной вдоль вектора начального относительного импульса $\mathbf{k}_i$). Сферические компоненты амплитуды рассеяния задаются формулами

$$\begin{gathered} f_0(\theta) = (4k_ik_f)^{-1/2} \times \\ \times \sum_{l=0}^{\infty} \left[lS_{l-1\to l} - (l+1)S_{l+1\to l}\right] P_l(\cos\theta), \\ f_{\pm1}(\theta,\varphi) = \mp\left(1/\sqrt{2}\right)\exp(\pm i\varphi) f_{(1)}(\theta), \\ f_{(1)}(\theta) = (4k_ik_f)^{-1/2} \times \\ \times \sum_{l=1}^{\infty} \left[S_{l-1\to l} + S_{l+1\to l}\right] P_1^1(\cos\theta) \end{gathered} \tag{6}$$

и связаны с декартовыми компонентами соотношениями

$$\begin{gathered} f_z(\theta) = f_0(\theta), \quad f_x(\theta,\varphi) = \cos\varphi f_{(1)}(\theta), \\ f_y(\theta,\varphi) = \sin\varphi f_{(1)}(\theta). \end{gathered} \tag{7}$$

Элементы S-матрицы рассеяния имеют вид

$$\begin{gathered} S_{l_i\to l_f} = -i2\pi \exp\left[i(\delta_i^{l_i} + \delta_f^{l_f})\right] \times \\ \times \int_0^{\infty} \Psi^{l_f}_{E_f}(R) V(R) \Psi^{l_i}_{E_i}(R)\, dR. \end{gathered} \tag{8}$$

Здесь $\Psi^l_E(R)$ есть радиальные, регулярные в нуле вещественные волновые функции, нормированные на δ-функцию от энергии, δ^l — фазы упругого рассеяния.

Выражения (6) наряду с полиномами Лежандра $P_l(\cos\theta)$ содержат присоединенные функции Лежандра $P_l^1(\cos\theta)$, которые возникают при вычислении матричного элемента угловой части дипольного взаимодействия $V(\hat{\mathbf{R}})$ в обкладках сферических функций, задающих начальное и конечное вращательные состояния квазимолекулы. Поглощение фотона приводит к изменению углового момента относительного движения атомов $l \pm 1 \to l$, которое соответствует ветвям P и R в теории излучения молекул.

В случае произвольной линейной поляризации,

$$\mathbf{e} = \mathbf{e}_z \cos\theta_p + \mathbf{e}_x \sin\theta_p \cos\varphi_p + \mathbf{e}_y \sin\theta_p \sin\varphi_p, \tag{9}$$

амплитуда рассеяния имеет вид

$$\begin{aligned} &f(\theta,\varphi,\mathbf{e}) = \\ &\quad = \cos\theta_p f_0(\theta) + \sin\theta_p \cos(\varphi-\varphi_p) f_{(1)}(\theta), \end{aligned} \tag{10}$$

при этом дифференциальное сечение задается формулой

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma(\mathbf{e})}{d\Omega} = \frac{k_f}{k_i} \Big\{ &\cos^2\theta_p |f_0(\theta)|^2 + \\ &+ \sin^2\theta_p \cos^2(\varphi-\varphi_p) |f_{(1)}(\theta)|^2 + \\ &+ \sin(2\theta_p)\cos(\varphi-\varphi_p)\,\mathrm{Re}\left[f_0(\theta) f^*_{(1)}(\theta)\right]\Big\}. \end{aligned} \tag{11}$$

Проинтегрировав (11) по телесному углу Ω, получаем выражение для полного сечения:

$$\sigma(\mathbf{e}) = \sigma_\parallel \cos^2\theta_p + \sigma_\perp \sin^2\theta_p, \tag{12}$$

где

$$\begin{gathered} \sigma_\parallel = 2\pi \frac{k_f}{k_i} \int |f_0(\theta)|^2 \sin\theta\, d\theta, \\ \sigma_\perp = \pi \frac{k_f}{k_i} \int |f_{(1)}(\theta)|^2 \sin\theta\, d\theta \end{gathered} \tag{13}$$

есть полные сечения для случаев, соответственно, параллельной начальному относительному импульсу и перпендикулярной поляризаций. Множитель $1/2$ возникает в выражении для $\sigma_\perp$ при усреднении по азимутальному углу φ. Проинтегрировав квадраты модулей амплитуд, $|f_0(\theta)|^2$ и $|f_{(1)}(\theta)|^2$, по углу рассеяния θ, с учетом ортогональности полиномов Лежандра имеем

$$\begin{gathered} \sigma_\parallel = \frac{\pi}{k_i^2} \sum_{l=0}^{\infty} \frac{1}{2l+1} \left|lS_{l-1\to l} - (l+1)S_{l+1\to l}\right|^2, \\ \sigma_\perp = \frac{\pi}{2k_i^2} \sum_{l=1}^{\infty} \frac{l(l+1)}{2l+1} \left|S_{l-1\to l} + S_{l+1\to l}\right|^2. \end{gathered} \tag{14}$$

Усредняя полное сечение (12) по поляризациям излучения или по направлениям начальной относительной скорости сталкивающихся атомов в условиях газовой ячейки, получаем

$$\begin{aligned} \sigma &= \frac{\sigma_\parallel + 2\sigma_\perp}{3} = \\ &= \frac{\pi}{3k_i^2} \sum_{l=0}^{\infty} \left[(l+1)|S_{l\to l+1}|^2 + l|S_{l\to l-1}|^2\right], \end{aligned} \tag{15}$$

где множитель 2 перед $\sigma_\perp$ соответствует двум возможным перпендикулярным поляризациям.

В случае, когда вектор поляризации $\mathbf{e}$ лежит в плоскости столкновения, положим ось x в той же полуплоскости, что и вектор поляризации ($\varphi_p = 0$), при этом для наблюдателя, ориентированного головой по оси y и лицом в направлении оси z, рассеянию налево соответствует $\varphi = 0$, а рассеянию направо — $\varphi = \pi$. Выражения для амплитуды рассеяния и дифференциального сечения принимают вид

$$f(\theta, \theta_p) = \cos\theta_p f_0(\theta) \pm \sin\theta_p f_{(1)}(\theta), \tag{16}$$

$$\frac{d\sigma(\theta_p)}{d\Omega} = \frac{k_f}{k_i}\left(\cos^2\theta_p \left|f_0(\theta)\right|^2 + \sin^2\theta_p \left|f_{(1)}(\theta)\right|^2 \pm \right.$$
$$\left. \pm \sin(2\theta_p)\,\mathrm{Re}\left[f_0(\theta) f^*_{(1)}(\theta)\right]\right), \tag{17}$$

где верхний знак отвечает рассеянию налево, нижний — рассеянию направо.

В случае правой или левой круговой поляризации в плоскости столкновения,

$$\mathbf{e}_{r,l} = \mp\frac{\mathbf{e}_z \pm i\mathbf{e}_x}{\sqrt{2}}, \tag{18}$$

амплитуда и дифференциальное сечение рассеяния имеют вид

$$f_{r,l}(\theta) = \mp\frac{f_0(\theta) \pm i f_{(1)}(\theta)}{\sqrt{2}}, \tag{19}$$

$$\frac{d\sigma_{r,l}}{d\Omega} = \frac{k_f}{k_i}\left(\frac{1}{2}\left|f_0(\theta)\right|^2 + \frac{1}{2}\left|f_{(1)}(\theta)\right|^2 \pm \right.$$
$$\left. \pm\,\mathrm{Im}\left[f_0(\theta) f^*_{(1)}(\theta)\right]\right). \tag{20}$$

Для правой круговой поляризации верхний знак в формуле (20) соответствует рассеянию налево, нижний знак — рассеянию направо, для левой круговой поляризации — наоборот.

2.2. Приближение Кондона

В рамках кондоновского приближения (см., например, [2, 10, 11]) радиационные переходы происходят в моменты, когда атомы находятся на удалении R_C друг от друга. Радиус R_C зависит от частоты излучения и определяется из уравнения

$$\Delta U(R_C) = \Delta\omega, \tag{21}$$

где $\Delta U = U_e - U_g$ — разность потенциалов возбужденного и основного состояний, отсчитанных от уровней энергии изолированных атомов, $\Delta\omega$ — отстройка частоты излучения ω от частоты запрещенного атомного перехода ω_0. Для рассматриваемой

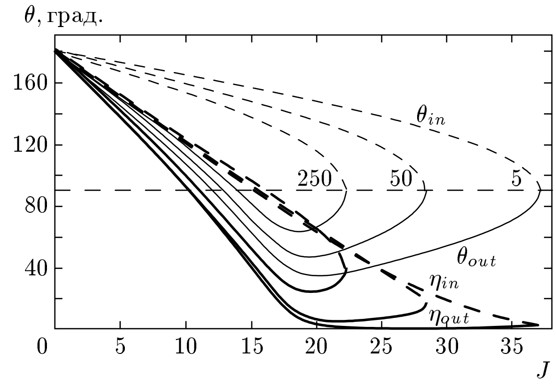

Рис. 1. Функции отклонения $\eta_{in,out}(J)$ и углы, задающие положения кондоновских векторов $\theta_{in,out}(J)$, рассчитанные для энергии столкновения $E = 10^{-3}$ ат. ед. при различных значениях частоты отстройки $\Delta\omega = 5$, 50, 250 см$^{-1}$

реакции (1) разностный потенциал ΔU имеет максимум при $R = 4$. При этом уравнение (21) в интересующем нас интервале частот $\Delta\omega \in 0$–300 см$^{-1}$ определяет две кондоновские точки: одна из них находится при $R > 6$, вторая — при $R < 3.5$. В работе [10] было показано, что при энергиях столкновения $E \sim 10^{-3}$ вкладом от второй кондоновской точки можно пренебречь и ограничиться рассмотрением радиационных переходов при $R > 6$. Таким образом, в рамках полуклассического рассмотрения рассеяние на фиксированный угол θ формируется за счет вклада от двух траекторий с угловыми моментами $J_{1,2}$, которые можно определить из уравнений

$$\eta_{in,out}(J) = \theta, \tag{22}$$

где функции отклонения

$$\eta_{in,out}(J) = \pi - (\chi_e + \chi_g)(\infty, J) \mp$$
$$\mp (\chi_e - \chi_g)(R_C, J), \tag{23}$$

$$\chi(R, J) = J\int\limits_{R_{tp}}^{R}\frac{dR}{R^2 k(R)},$$

$$k(R) = \sqrt{2\mu(E - U(R)) - \frac{J^2}{R^2}},$$

соответствуют траекториям, для которых радиационный переход имеет место при сближении (in) либо при разлете (out) атомов.

На рис. 1 показаны функции отклонения $\eta_{in,out}$ для различных значений частоты отстройки $\Delta\omega$.

При $\theta > \theta_C$, где угол θ_C отвечает максимальному угловому моменту J_C, для которого точка перехода R_C классически достижима, вклад в рассеяние на угол θ вносят in- и out-траектории. При $\theta_r < \theta < \theta_C$, где θ_r есть минимум функции отклонения η_{out}, обе траектории соответствуют переходу при разлете. Область углов $\theta < \theta_r$ классически недостижима. Поскольку величины θ_C и θ_r близки, будем считать в дальнейшем, что полуклассическое кондоновское приближение пригодно для анализа дифференциальных сечений рассеяния в области углов $\theta > \theta_C$, где рассеяние определяется суммой вкладов от in- и out-траекторий.

В случае, когда вектор линейной поляризации расположен в плоскости столкновения, выражения для амплитуды и дифференциального сечения рассеяния, полученные в рамках полуклассического кондоновского приближения, имеют вид [2]

$$f_{FC}(\theta,\theta_p) = \left(\frac{k_i}{k_f}\right)^{1/2} \Big[\sigma_{in}^{1/2}\cos(\theta_{in}-\theta_p)\exp(i\phi_{in}) + \sigma_{out}^{1/2}\cos(\theta_{out}-\theta_p)\exp(i\phi_{out})\Big], \quad (24)$$

$$\frac{d\sigma_{FC}(\theta,\theta_p)}{d\Omega} = \sigma_{in}\cos^2(\theta_{in}-\theta_p) + \sigma_{out}\cos^2(\theta_{out}-\theta_p) + 2(\sigma_{in}\sigma_{out})^{1/2}\cos(\phi_{in}-\phi_{out})\cos(\theta_{in}-\theta_p) \times \cos(\theta_{out}-\theta_p). \quad (25)$$

Здесь

$$\sigma_{in,out} = \frac{P_{L1}(J_{in,out})J_{in,out}|dJ_{in,out}/d\theta|}{k_i^2\sin\theta}$$

представляют собой однотраекторные сечения рассеяния, полученные без учета сферически-несимметричной части взаимодействия $V(\hat{\mathbf{R}})$,

$$P_{L1} = \frac{2\pi\mu V_C^2}{k_C\Delta F_C}$$

есть вероятность Ландау, вычисленная для однократного прохождения области неадиабатичности [17], $V_C = V(R_C)$ — матричный элемент взаимодействия в точке пересечения термов R_C,

$$\Delta F_C = (U_g' - U_e')(R_C)$$

есть разность сил в точке R_C, $k_C = k_e(R_C) = k_g(R_C)$ — импульс относительного движения атомов в точке R_C. Фазы $\phi_{in,out}$ определяются формулами

$$\phi_{in,out} = 2\delta_{in,out}(J_{in,out}) - \theta J_{in,out} \pm \frac{\pi}{4}, \quad (26)$$

$$2\delta_{in,out}(J) = \delta_e^J + \delta_g^J \pm (S_e - S_g)(R_C), \quad (27)$$

где

$$S(R) = \int_{R_{tp}}^{R} k(R)\,dR$$

есть классические функции действия, δ^J представляют собой квазиклассические ВКБ-асимптотики для фаз рассеяния δ^l. Углы $\theta_{in,out}$ задают направления кондоновских векторов $\mathbf{R}_C^{in,out}$, т. е. положения межъядерной оси в моменты радиационных переходов

$$\theta_{in,out}(J) = \pi - \chi_g(\infty, J) \pm \chi_g(R_C, J). \quad (28)$$

На рис. 1 приведены функции $\theta_{in,out}(J)$ для различных частот излучения.

Формулы (24), (25) соответствуют рассеянию налево ($\varphi = 0$), при рассмотрении рассеяния в правую полуплоскость ($\varphi = \pi$) следует заменить θ_p на $\pi - \theta_p$. Множители $\cos(\theta_{in,out} - \theta_p)$ представляют собой угловую часть оператора дипольного взаимодействия $V(\hat{\mathbf{R}})$.

В случае правой или левой круговой поляризации в плоскости столкновения дифференциальное сечение рассеяния имеет вид

$$\frac{d\sigma_{r,l}^{FC}}{d\Omega} = \frac{\sigma_{in}}{2} + \frac{\sigma_{out}}{2} + (\sigma_{in}\sigma_{out})^{1/2}\cos\left(\phi_{in} - \phi_{out} \pm (\theta_{in} - \theta_{out})\right). \quad (29)$$

Полные сечения рассеяния для случаев параллельной и перпендикулярной линейных поляризаций задаются формулами

$$\sigma_{\parallel}^{FC} = \frac{2\pi}{k_i^2}\int_0^{J_C} P_{L1}(J)\left(\cos^2\theta_{in} + \cos^2\theta_{out}\right) J\,dJ,$$
$$\sigma_{\perp}^{FC} = \frac{\pi}{k_i^2}\int_0^{J_C} P_{L1}(J)\left(\sin^2\theta_{in} + \sin^2\theta_{out}\right) J\,dJ. \quad (30)$$

Сложив $\sigma_{\parallel}^{FC}/3$ и $2\sigma_{\perp}^{FC}/3$, получим хорошо известное выражение для полного сечения неадиабатического перехода (см., например, [18]), в котором коэффициент $1/3$ соответствует тому, что в условиях газовой ячейки в среднем только треть квазимолекул имеют дипольный момент, ориентированный вдоль вектора поляризации.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ

3.1. Полные сечения рассеяния

Расчет дифференциальных (11) и полных (14) сечений рассеяния сводится к вычислению элементов S-матрицы (8) и последующему суммированию по парциальным сечениям. Для рассматриваемой энергии столкновения $E = 10^{-3}$ ат. ед. при суммировании следует учитывать порядка 40 парциальных волн (см. рис. 1). Поскольку потенциалы взаимодействия атомов как в основном, так и в возбужденном состояниях квазимолекулы являются сугубо отталкивательными, что исключает возможность эффектов «орбитирования», а также образование квазисвязанных состояний, вычисление элементов S-матрицы рассеяния можно существенно упростить, используя равномерные аппроксимации Лангера (см., например, [19]) для радиальных волновых функций начального и конечного состояний:

$$\Psi^l_E(R) = (2\mu)^{1/2}\left(\frac{\xi(R)}{k^2(R)}\right)^{1/4}\mathrm{Ai}\left(-\xi(R)\right), \qquad (31)$$

где

$$\xi(R) = \left(\frac{3}{2}S(R)\right)^{2/3},$$

Ai есть функция Эйри.

Результаты расчета полных сечений по формулам (14), (8) приведены на рис. 2. В голубом крыле запрещенной спектральной линии сечение для перпендикулярной поляризации преобладает над сечением для параллельной поляризации. По мере уменьшения частоты отстройки различие между сечениями для параллельной и перпендикулярной поляризаций стремится к нулю, так что при $\Delta\omega = -14$ см$^{-1}$ сечение становится не зависящим от поляризации. При дальнейшем уменьшении частоты ситуация меняется и сечение параллельной поляризации начинает преобладать над сечением перпендикулярной поляризации.

Относительное поведение сечений для параллельной и перпендикулярной поляризаций в голубом крыле можно понять на основе полуклассического кондоновского приближения (30). Поскольку взаимодействие атомов в основном состоянии является короткодействующим, в первом приближении можно положить $U_g \equiv 0$, при этом положения кондоновских векторов определяются простыми формулами:

$$\theta_{in} = \pi - \arcsin\frac{J}{k_i R_C}, \quad \theta_{out} = \arcsin\frac{J}{k_i R_C}. \qquad (32)$$

Подставляя $\theta_{in,out}$ из (32) в выражения (30) и интегрируя по угловому моменту, получаем $\sigma_\parallel^{FC} = \sigma_\perp^{FC}$. Таким образом, при отсутствии взаимодействия между атомами в основном состоянии полное сечение оказывается не зависящим от поляризации излучения. Учет короткодействующего отталкивания в потенциале основного состояния приводит к увеличению множителя $\sin^2\theta_{out}$ и, соответственно, к уменьшению $\cos^2\theta_{out}$ для малых прицельных параметров $b < 6$ $(J < 20)$, при этом сечение $\sigma_\perp^{FC}$ становится больше сечения $\sigma_\parallel^{FC}$. По мере уменьшения частоты отстройки $\Delta\omega$ кондоновский радиус R_C стремится к бесконечности, при этом растет область прицельных параметров, дающих вклад в сечение, так что относительный вклад от области малых прицельных параметров, которым и определяется различие между $\sigma_\perp$ и $\sigma_\parallel$, становится все менее существенным.

На рис. 3 приведены парциальные сечения для параллельной и перпендикулярной поляризаций. Можно отметить следующие особенности, которые имеют место для всех частот излучения. Во-первых, сечение $\sigma^l_\perp$ обращается в нуль при $l = 0$. Во-вторых, сечение $\sigma^l_\perp$ преобладает над $\sigma^l_\parallel$ в области больших l, в то время как для малых l имеет место обратная ситуация. Действительно, радиационные переходы для траекторий с большими прицельными параметрами происходят при положениях межъядерной оси, близких к положению, перпендикулярному вектору начальной относительной скорости сталкивающихся атомов, при этом дипольное взаимодействие максимально для излучения, поляризованного перпендикулярно. В случае малых прицельных параметров — наоборот, положения межъядерной оси в моменты радиационных переходов близки к параллельному.

3.2. Дифференциальные сечения

На рис. 4 показаны дифференциальные сечения $\sigma_z(\theta)$ и $\sigma_x(\theta)$, рассчитанные для случаев параллельной и перпендикулярной линейных поляризаций в плоскости столкновения $(\varphi = \varphi_p)$. Рисунки демонстрируют сильное различие сечений $\sigma_z(\theta)$ и $\sigma_x(\theta)$ как в области голубого, так и в области красного крыла запрещенной спектральной линии. Характерной особенностью сечения $\sigma_x(\theta)$ является обращение его в нуль при $\theta = 0$. Действительно, для переходов $^1S \to {}^1S$ излучение фотона с проекцией спина $m_{ph} = \pm 1$ приводит к изменению проекции углового момента относительного движения атомов m на ± 1, что невозможно при строгом рассеянии вперед (для $\theta = 0$ имеем $m_i = m_f = 0$). Сечение $\sigma_z(\theta)$,

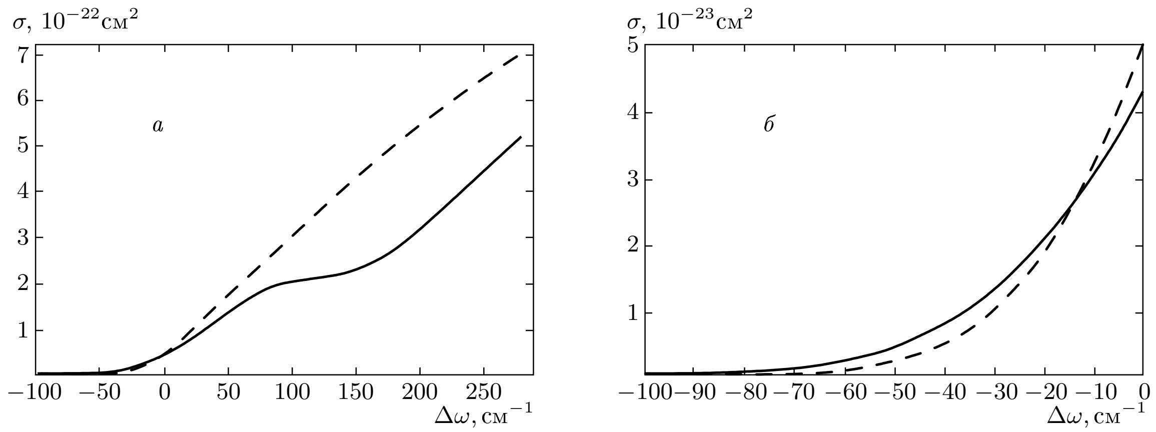

Рис. 2. Полные сечения поглощения $\sigma_\parallel$ (сплошные линии) и $\sigma_\perp$ (штриховые линии), рассчитанные для энергии столкновения $E = 10^{-3}$ ат. ед.; a — голубое крыло, $б$ — красное крыло запрещенной линии

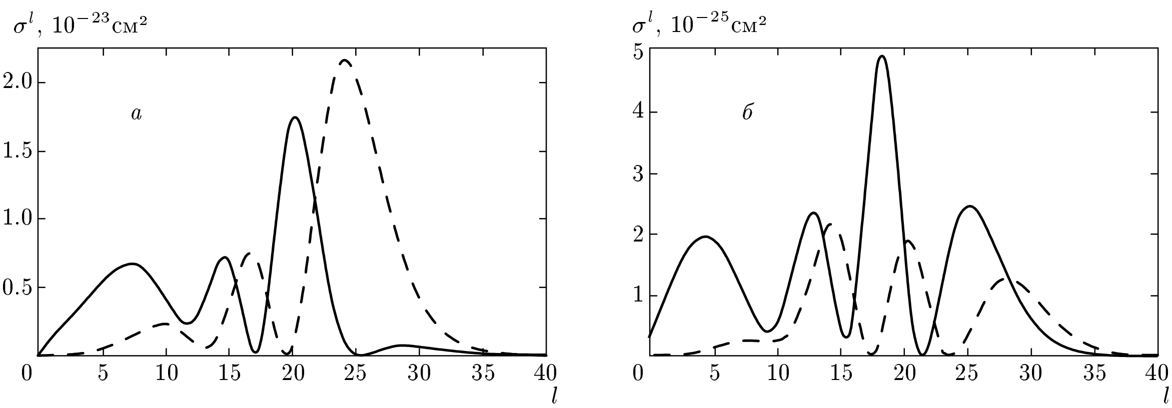

Рис. 3. Парциальные сечения $\sigma_\parallel^l$ (сплошные линии) и $\sigma_\perp^l$ (штриховые линии) как функции углового момента l, рассчитанные для энергии столкновения $E = 10^{-3}$ ат. ед. при различных значениях частоты отстройки: $\Delta\omega = 50$ (a), -50 ($б$) см$^{-1}$

наоборот, имеет при $\theta = 0$ ярко выраженный максимум, природа которого аналогична эффекту сияния. При малых отстройках частоты $\Delta\omega$, когда радужный угол θ_r близок к нулю (см. рис. 1), практически все частицы, перешедшие в возбужденное состояние при разлете, рассеиваются на малые углы, при этом большая часть сечения σ_z оказывается сосредоточена в области центрального максимума.

Рисунки 5, 6 демонстрируют лево-правую асимметрию рассеяния в плоскости, образованной векторами $\mathbf{k}_i$ и $\mathbf{e}$ для случаев линейной и круговой поляризаций. На рис. 5 приведены дифференциальные сечения, рассчитанные по формуле (17) для значения угла поляризации $\theta_p = 45°$. Лево-правая асимметрия рассеяния связана с асимметричным положением вектора поляризации в плоскости рассеяния. Так, в области параметров, допускающей использование кондоновского приближения, рассеяние как в левую, так и в правую полуплоскость определяется формулой (25), однако, как отмечалось выше, при рассмотрении рассеяния в правую полуплоскость угол поляризации θ_p следует заменить на $\pi - \theta_p$. Интересной особенностью дифференциального сечения является исчезновение асимметрии рассеяния в области малых значений θ при $\Delta\omega \approx 0$ (рис. 5$б$). Как показывают более точные расчеты, для $E = 220$ см$^{-1}$ $= 10^{-3}$ ат. ед. асимметрия исчезает при $\Delta\omega = 0.3$ см$^{-1}$, для $E = 100$ см$^{-1}$ — при $\Delta\omega = -2.3$ см$^{-1}$. Указанная выше особенность связана с интерференцией потоков частиц, рассеянных в различных полуплоскостях, и не может быть объяснена в рамках классических представлений о

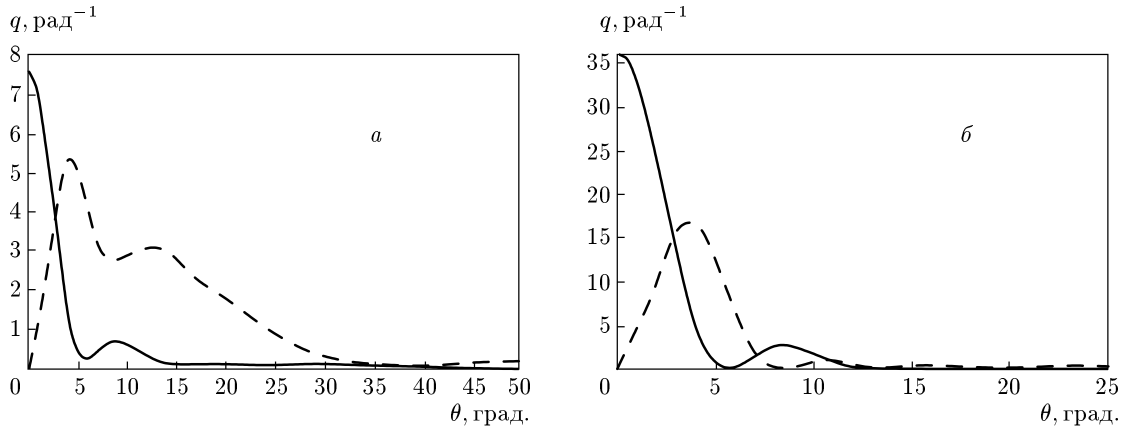

Рис. 4. Дифференциальные сечения $q_z(\theta) = (d\sigma_z/d\Omega)/\sigma$ (сплошные линии) и $q_x(\theta) = (d\sigma_x/d\Omega)/\sigma$ (штриховые линии), рассчитанные для двух взаимноперпендикулярных поляризаций в плоскости столкновения. Расчет выполнен для энергии столкновения $E = 10^{-3}$ ат. ед. при различных значениях частоты отстройки: $\Delta\omega = 50$ (*а*), -50 (*б*) см$^{-1}$. Сечения нормированы условием $\frac{2\pi}{3}\int_0^\pi (q_x + q_z)\sin\theta\, d\theta = 1$

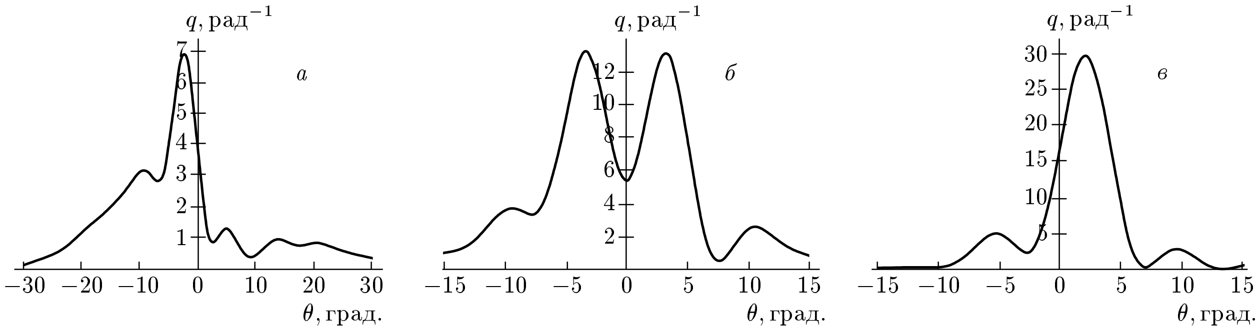

Рис. 5. Дифференциальные сечения $q(\theta, \theta_p) = (d\sigma(\theta_p)/d\Omega)/\sigma$, рассчитанные для линейной поляризации $\theta_p = 45^\circ$ в плоскости столкновения. Расчет выполнен для энергии столкновения $E = 10^{-3}$ ат. ед. при различных значениях частоты отстройки: $\Delta\omega = 50$ (*а*), 0 (*б*), -50 (*в*) см$^{-1}$. Отрицательные значения θ соответствуют рассеянию налево, положительные — рассеянию направо. Сечения нормированы условием $\frac{2\pi}{3}\int_{-\pi}^{\pi} q\sin|\theta|\, d\theta = 1$

рассеянии. Тем не менее можно предложить качественную интерпретацию, основанную на приближении Кондона.

Как следует из формулы (17), лево-правая асимметрия рассеяния исчезает в случае, когда вещественная часть произведения $f_0(\theta)f^*_{(1)}(\theta)$ обращается в нуль. Заменим функции Лежандра в формулах (6) их асимптотическими выражениями при малых θ (см., например, [20]). С точностью до первого порядка по θ имеем

$$P_l(\cos\theta) \approx 1, \quad P_l^1(\cos\theta) \approx l(l+1)\frac{\theta}{2}\,.$$

Учитывая также, что рассеяние на малые углы определяется большими l (в нашем случае $l > 20$, см. рис. 1), и проводя стандартную для больших l замену суммирования интегрированием, получаем

$$\begin{gathered} f_0(\theta) = (4k_ik_f)^{-1/2}\int_0^\infty (S_{l-1\to l} - S_{l+1\to l})J\,dJ, \\ f_{(1)}(\theta) = (4k_ik_f)^{-1/2}\frac{\theta}{2}\times \\ \times\int_0^\infty (S_{l-1\to l} + S_{l+1\to l})J^2\,dJ. \end{gathered} \tag{33}$$

Воспользовавшись кондоновской аппроксимацией для элементов S-матрицы (см., например, [11]), учитывая, что

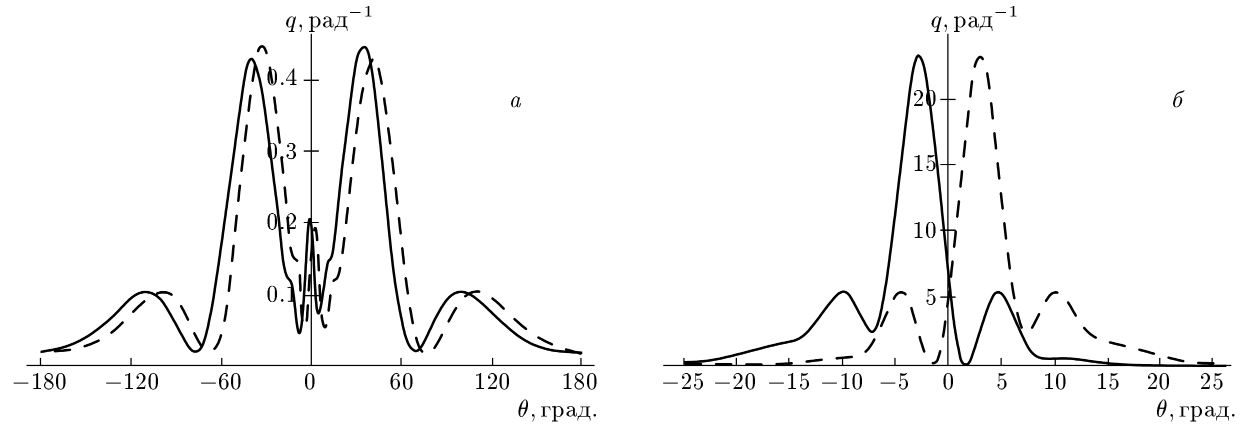

Рис. 6. Дифференциальные сечения $q_{r,l}(\theta) = (d\sigma_{r,l}/d\Omega)/\sigma$, рассчитанные для правой (сплошные линии) и левой (штриховые линии) круговых поляризаций в плоскости столкновения. Расчет выполнен для энергии столкновения $E = 10^{-3}$ ат. ед. при различных значениях частоты отстройки: $\Delta\omega = 250$ (*а*), 0 (*б*) см$^{-1}$. Отрицательные значения θ соответствуют рассеянию налево, положительные — рассеянию направо. Сечения нормированы условием $\frac{2\pi}{3}\int\limits_{-\pi}^{\pi} q_{r,l}\sin|\theta|\,d\theta = 1$

$$2\delta_{in,out}(J \pm 1 \to J) = \\ = 2\delta_{in,out}(J \to J) \pm \left(\theta_{in,out}(J) - \frac{\pi}{2}\right),$$

а также принимая во внимание, что рассеяние на малые углы формируется главным образом за счет атомов, перешедших в возбужденное состояние при разлете, получаем

$$\begin{gathered} f_0(\theta) = -i\exp\frac{i\pi}{4}(k_ik_f)^{-1/2} \times \\ \times \int\limits_0^{J_C} P_{L1}^{1/2}\exp(i2\delta_{out})\cos\theta_{out}J\,dJ, \\ f_{(1)}(\theta) = -\exp\frac{i\pi}{4}(k_ik_f)^{-1/2}\frac{\theta}{2} \times \\ \times \int\limits_0^{J_C} P_{L1}^{1/2}\exp(i2\delta_{out})\sin\theta_{out}J^2\,dJ. \end{gathered} \quad (34)$$

Как видно на рис. 1, при $\Delta\omega \to 0$ функция отклонения η_{out} практически равна нулю в области $J > 20$, так что фаза рассеяния

$$2\delta_{out} = \int \eta_{out} dJ$$

близка к постоянной во всей области интегрирования, существенной для малых θ. Вынося $\exp(i2\delta_{out})$ из-под знаков интегрирования, получаем, что комплексные фазы для амплитуд рассеяния f_0 и $f_{(1)}$ отличаются на $\pi/2$, при этом $\mathrm{Re}[f_0f^*_{(1)}] = 0$. Таким образом, мы приходим к заключению, что исчезновение лево-правой асимметрии рассеяния при $\Delta\omega \approx 0$ имеет то же происхождение, что и всплеск дифференциального сечения $\sigma_z(\theta)$ при $\theta = 0$, и непосредственно связано с короткодействующим характером взаимодействия атомов в основном состоянии.

На рис. 6 показаны дифференциальные сечения, рассчитанные по формуле (20) для случаев левой и правой круговых поляризаций в плоскости рассеяния. Сечения демонстрируют сдвиг осцилляционной структуры влево для случая правой круговой поляризации и вправо для случая левой круговой поляризации, что согласуется с результатом работы [2]. Исходя из формулы (29), можно получить простую полуклассическую оценку для величины сдвига $\Delta\theta$ между осцилляционными структурами сечений, соответствующих правой и левой круговым поляризациям:

$$\Delta\theta = 2\frac{\theta_{in} - \theta_{out}}{J_{in} - J_{out}}. \quad (35)$$

Как показывают сравнительные расчеты, данная оценка с погрешностью в пределах 5 % позволяет определить сдвиг между максимумами дифференциальных сечений для правой и левой круговых поляризаций в области углов $\theta > \theta_C$.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Использование первого порядка метода искаженных волн в комбинации с равномерной аппроксимацией Лангера для радиальных волновых функций начального и конечного состояний квазимолекулы позволило при разных поляризациях излучения рассчитать дифференциальные и полные сечения процесса радиационно-столкновительного возбуждения метастабильного состояния одного из сталкивающихся атомов в широкой области частот излучения, включающей оба крыла и центр линии запрещенного атомного перехода. Предложенный подход накладывает определенные ограничения на область допустимых энергий столкновения и интенсивностей излучения. Оценка матричного элемента взаимодействия показывает, что при энергиях столкновения $E \sim 10^{-3}$ ат. ед. верхняя граница для интенсивностей излучения, допускающих использование метода искаженных волн, составляет величину порядка 10^{11} Вт/см^2. Со своей стороны, использование аппроксимации Лангера для волновых функций исключает из рассмотрения эффекты, связанные с «орбитированием» и резонансным рассеянием на квазидискретных уровнях. Последнее обстоятельство устанавливает нижнюю границу для допустимых энергий столкновения, которая сравнима с глубиной потенциальных ям, обусловленных силами поляризационного притяжения между атомами, и для рассмотренной реакции (1) составляет величину порядка 20 см$^{-1}$.

Привлечение кондоновского приближения дало возможность качественно интерпретировать ряд особенностей полных и дифференциальных сечений в области голубого крыла запрещенной спектральной линии, в то же время кондоновское приближение не позволяет правильно интерпретировать структуру сечений в области красного крыла. Такая интерпретация может оказаться возможной на основе равномерного квазиклассического приближения [10–12, 21], обобщенного на случай сферически-несимметричного взаимодействия атомов.

В заключение хочется отметить актуальность первого в мире эксперимента по исследованию угловых распределений атомов, формируемых в ходе реакции (1) или аналогичной реакции, приводящей к возбуждению метастабильного состояния одного из сталкивающихся атомов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования РФ (грант PD02-1.2-377) и администрации Санкт-Петербурга (грант PD03-1.2-193).

ЛИТЕРАТУРА

1. J. Grosser, O. Hoffmann, C. Rakete, and F. Rebentrost, J. Phys. Chem. A **101**, 7627 (1997).
2. F. Rebentrost, S. Klose, and J. Grosser, Eur. Phys. J. D **1**, 277 (1998).
3. J. Grosser, O. Hoffmann, W. F. Schulze, and F. Rebentrost, J. Chem. Phys. **111**, 2853 (1999).
4. J. Grosser, O. Hoffmann, S. Klose, and F. Rebentrost, Europhys. Lett. **39**, 147 (1997).
5. J. Grosser, O. Hoffmann, and F. Rebentrost, J. Phys. B **33**, L577 (2000).
6. P. D. Kleiber and K. M. Sando, Phys. Rev. A **35**, 3715 (1987).
7. P. D. Kleiber, A. K. Fletcher, and K. M. Sando, Phys. Rev. A **37**, 3584 (1988).
8. T. Kurosawa, K. Ohmori, H. Chiba et al., J. Chem. Phys. **108**, 8101 (1998).
9. E. Bichoutskaya, A. Devdariani, K. Ohmori et al., J. Phys. B **34**, 2301 (2001).
10. А. З. Девдариани, А. Л. Загребин, Ф. Ребентрост и др., ЖЭТФ **122**, 481 (2002).
11. А. З. Девдариани, Е. А. Чесноков, в сб. *Лазерные исследования в Санкт-Петербургском государственном университете*, НИИ «Российский Центр лазерной физики», Санкт-Петербург (2001), с. 145.
12. А. З. Девдариани, Е. А. Чесноков, Хим. физика **22**, 109 (2003).
13. M. Keil, L. J. Danielson, U. Buck et al., J. Chem. Phys. **89**, 2866 (1988).
14. H. Haberland, W. Konz, and P. Oesterlin, J. Phys. B **15**, 2969 (1982).
15. А. Л. Загребин, С. И. Церковный, Опт. и спектр. **79**, 556 (1995).
16. Н. Мотт, Г. Месси, *Теория атомных столкновений*, Изд-во иностр. лит., Москва (1951), с. 180.
17. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Квантовая механика*, Наука, Москва (1989), с. 656.
18. Е. Е. Никитин, С. Я. Уманский, *Неадиабатические переходы при медленных атомных столкновениях*, Атомиздат, Москва (1979), с. 177.
19. J. N. L. Connor, J. Chem. Phys. **74**, 1047 (1981).
20. М. Абрамовиц, И. Стиган, *Справочник по специальным функциям*, Наука, Москва (1979), с. 153.
21. А. З. Девдариани, ЖЭТФ **96**, 472 (1989).