

УДК 539.184.28

М. П. Аузиньш

## О РЕШЕНИИ УРАВНЕНИЙ ДВИЖЕНИЯ ПОЛЯРИЗАЦИОННЫХ МОМЕНТОВ ДЛЯ БОЛЬШИХ ЗНАЧЕНИЙ УГЛОВОГО МОМЕНТА

Латвийский государственный университет им. П. Стучки

### ВВЕДЕНИЕ

В последнее время большое внимание привлекают нелинейные эффекты, возникающие при резонансном взаимодействии света с атомами и молекулами газа, помещенного в магнитное поле. Как правило, для описания таких эффектов наиболее удобными являются коэффициенты разложения матрицы плотности [1] по неприводимым тензорным операторам [2]. Эти коэффициенты в оптике принято называть поляризационными моментами [3—5]. Они несут в себе всю информацию, содержащуюся в матрице плотности и, следовательно, с наибольшей возможной полнотой описывают статистический ансамбль слабо взаимодействующих квантовых частиц.

В общем случае для произвольных значений углового момента  $J''$  нижнего и  $J'$  верхнего состояний уравнения движения поляризационных моментов этих уровней известны [6]. Однако встречаются значительные технические трудности при их решении для больших значений  $J''$  и  $J'$  (в молекулах типичны переходы между уровнями с  $J \sim 100$ ). Эти трудности связаны с большим количеством поляризационных моментов, возникающих в процессе нелинейного поглощения света, что приводит к большому количеству связанных уравнений. Решение задачи затрудняет также громоздкость расчета коэффициентов при поляризационных моментах в этих уравнениях.

Целью настоящей работы является получение асимптотических уравнений движения поляризационных моментов для больших значений угловых моментов, а также формализация их решения для создания ЭМВ-программ. При этом ставилась цель сохранить «квантомеханичность» задачи. Это позволяет не исключать из рассмотрения эффекты, связанные с создаваемыми световой волной когерентностями между волновыми функциями магнитных подуровней исследуемых состояний.

### УРАВНЕНИЯ ДВИЖЕНИЯ ПОЛЯРИЗАЦИОННЫХ МОМЕНТОВ ДЛЯ ПРОИЗВОЛЬНЫХ ЗНАЧЕНИЙ $J''$ И $J'$

Предположим для определенности, что ось квантования выбрана вдоль стационарного магнитного поля  $\mathbf{H}$ , приложенного к ансамблю частиц. Тогда уравнения движения поляризационных моментов

$\varphi_q^*$ ,  $f_Q^K$  нижнего и верхнего состояний можно записать в методически удобной и компактной форме, предложенной в работе [7]:

$$\frac{df_Q^K}{dt} = \Gamma_p \sum_{x\kappa} {}^*F^{x\kappa} \{ \Phi^{(x)} \otimes \varphi^{(\kappa)} \}_q^K - \Gamma_p \sum_{x\kappa'} {}^*A^{x\kappa'} \{ \Phi^{(x)} \otimes f^{(\kappa')} \}_q^K - (\Gamma_K - iQ\Omega) f_Q^K + \Lambda_Q^K \delta_{K0} \delta_{Q0}, \quad (1a)$$

$$\frac{d\varphi_q^*}{dt} = -\Gamma_p \sum_{x\kappa'} {}^*A^{x\kappa'} \{ \Phi^{(x)} \otimes \varphi^{(\kappa')} \}_q^* + \Gamma_p \sum_{x\kappa} {}^*F^{x\kappa} \{ \Phi^{(x)} \otimes f^{(\kappa)} \}_q^* - (\gamma_K - iq\omega) \varphi_q^* + \Gamma_{J'J''} C_\kappa \delta_{K\kappa} \delta_{Qq} f_Q^K + \lambda_q^* \delta_{q0} \delta_{Q0}. \quad (16)$$

Тут уместно напомнить, что поляризационные моменты, с математической точки зрения являющиеся тензорами, могут иметь следующие значения индексов: ранг тензора  $0 \leq \kappa \leq 2J''$ ,  $0 \leq K \leq 2J'$ , а его компонента  $|q| \leq \kappa$ ,  $|Q| \leq K$ .

В уравнениях (1a), (16) приняты следующие обозначения:  $\Gamma_p$  — скорость поглощения возбуждающего света на переходе  $J'' \rightarrow J'$ ,  $\gamma_K$ ,  $\Gamma_K$  — скорости релаксации соответствующих поляризационных моментов,  $\Gamma_{J'J''}$  — скорость обратного спонтанного перехода.  $\Omega$  и  $\omega$  есть частоты зеемановского расщепления верхнего и нижнего состояний под действием внешнего магнитного поля,  $\lambda_q^* \delta_{q0} \delta_{Q0}$  и  $\Lambda_Q^K \delta_{K0} \delta_{Q0}$  — члены, характеризующие изотропное восстановление заселенностей соответствующих уровней. Коэффициенты  ${}^*F^{x\kappa}$ ,  ${}^*A^{x\kappa'}$  и  $C_\kappa$  имеют вид

$${}^*F^{x\kappa} = \frac{\Pi_{J'}^3 \Pi_{x\kappa}^2}{\Pi_{J''K}} (-1)^{x+1} \begin{Bmatrix} K & J' & J' \\ X & 1 & 1 \\ \kappa & J'' & J'' \end{Bmatrix}, \quad (2)$$

$${}^*A^{x\kappa'} = \frac{[1 + (-1)^{\kappa+x+\kappa'}]}{2} \cdot \frac{\Pi_{J'}^2 \Pi_{x\kappa'}}{\Pi_\kappa} (-1)^{J'-J''+\kappa} \begin{Bmatrix} \kappa & X & \kappa' \\ J'' & J'' & J'' \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & X \\ J'' & J'' & J'' \end{Bmatrix}, \quad (3)$$

$$C_\kappa = (-1)^{J'-J''+\kappa+1} \Pi_{J'J''} \begin{Bmatrix} J'' & J'' & \kappa \\ J' & J' & 1 \end{Bmatrix}. \quad (4)$$

Символ  $\Pi_{ab\dots} = \sqrt{(2a+1)(2b+1)\dots} \begin{Bmatrix} \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \end{Bmatrix}, \begin{Bmatrix} \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \end{Bmatrix}$  —  $9j$  и  $6j$  символы.

$\Phi_\xi^x(\mathbf{e})$  — компоненты введенного Дьяконовым [3] тензора, характеризующего возбуждающий свет, имеющий поляризацию  $\mathbf{e}$ . Явный вид тензора

$$\Phi_\xi^x(\mathbf{e}) = \frac{1}{\Pi_x} \sum_{q_1 q_2} (-1)^{q_1} e_{q_1} (e_{q_2})^* C_{1q_1 1-q_2}^{x\xi}, \quad (5)$$

где  $e_{q_1}$ ,  $e_{q_2}$  — круговые компоненты вектора поляризации света,  $C_{1q_1 1-q_2}^{x\xi}$  — коэффициенты Клебша—Гордана. Неприводимое тензорное произведение раскрывается как

$$\{ \Phi^{(x)} \otimes \varphi^{(\kappa')} \}_q^* = \sum_{\xi q'} C_{\xi q' \kappa' q}^{xq} \Phi_\xi^x(\mathbf{e}) \varphi_{q'}^*. \quad (6)$$

Уравнения (1a) и (16) имеют следующий физический смысл: первый член обоих уравнений характеризует поглощение, второй — вы-

нужденное испускание, третий — процессы релаксации соответствующих моментов и воздействие внешнего магнитного поля, а четвертый член уравнения (16) характеризует обратные спонтанные переходы.

В ходе решения уравнений (1а) и (1б) возникают трудности.

Во-первых, подсчитав величины  $f_q^k, \varphi_q^k$ , можно увидеть, что количество связанных уравнений в системе (1а), (1б) есть  $(2J''+1)^2 + (2J'+1)^2$ . Правда, учитывая эрмитовость матрицы плотности, можно показать [3]

$$f_{-q}^k = (-1)^q (f_q^k)^* \quad \text{и}$$

$$\varphi_{-q}^k = (-1)^q (\varphi_q^k)^*,$$

что позволяет почти вдвое сократить число независимых неизвестных, но тем не менее их количество при больших  $J$  огромно.

Вторая трудность решения системы уравнений связана с громоздкостью расчета  ${}^kF^{jk}, {}^kA^{jk}, C_k$  в случае больших  $J$ . Без преодоления этих трудностей немислимо решение для молекул с  $J \sim 100$  системы (1а), (1б) даже на современных ЭВМ.

### АСИМПТОТИЧЕСКИЕ ВЫРАЖЕНИЯ ДЛЯ КОЭФФИЦИЕНТОВ ПРИ БОЛЬШИХ $J''$ И $J'$

Используя асимптотические выражения для  $6j$  символов [8]

$$\left\{ \begin{matrix} a & b & c \\ d+R & e+R & f+R \end{matrix} \right\} \approx \frac{(-1)^{a+b+d+e}}{\sqrt{2R(2c+1)}} C_{a\alpha b\beta}^{c\gamma},$$

где  $\alpha = f - e, \beta = d - f, \gamma = d - e, R \gg 1,$

запишем выражение для  ${}^kA^{jk}$  и  $C_k$  в случае  $J'', J' \rightarrow \infty$  следующим образом:

$${}^kA^{jk} = (-1)^\Delta \frac{\Pi_{jk}}{\Pi_k} C_{1\Delta 1-\Delta}^{j0} C_{j0k0}^{k'0}, \quad (7)$$

$$C_k = 1,$$

где  $\Delta = J' - J''$ . Для вывода асимптотических выражений коэффициентов  ${}^kF^{jk}$  воспользуемся разложением  $9j$ -символов в ряд  $6j$ -символов [8]

$$\left\{ \begin{matrix} a & b & c \\ d & e & f \\ g & h & i \end{matrix} \right\} = \sum_v (-1)^{2v} \Pi_v^2 \left\{ \begin{matrix} a & b & c \\ f & i & v \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} d & e & f \\ b & y & h \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} g & h & i \\ y & a & d \end{matrix} \right\}$$

с последующим применением асимптотик  $6j$ -символов для каждого члена ряда. Выполнив преобразование, получаем

$${}^kF^{jk} = (-1)^\Delta \frac{\Pi_{jk}}{\Pi_k} C_{1\Delta 1-\Delta}^{j0} C_{j0k0}^{k'0}. \quad (8)$$

Учитывая свойства асимптотических выражений для  $6j$ -символов, можно показать, что, полагая  $J'', J' \rightarrow \infty$ , мы в  ${}^kF^{jk}$  и  ${}^kA^{jk}$  допускаем ошибку порядка  $J^{-1}$ , а в  $C_k$  порядка  $J^{-2}$ .

Сравнивая выражения (7) и (8), видим, что  ${}^kA^{jk}$  и  ${}^kF^{jk}$  совпадают при равных индексах. Это существенно повышает симметрию уравнений (1а) и (1б).

Физически наблюдаемой величиной, регистрируемой в эксперименте, часто является интенсивность флуоресценции на переходе  $J' \rightarrow J''_1$  [3, 4].

Ввиду правил отбора по магнитным квантовым числам для дипольных переходов вклад в интенсивность флуоресценции вносит радиационный распад моментов  $f_q^K$  с рангом не выше 2. Для выражений, описывающих эту интенсивность, тоже могут быть получены асимптотические выражения. Поступая аналогично выводу выражения для  $C_n$ , находим

$$I(e') \sim (-1)^A \sum_K P_K C_{\Delta \rightarrow \Delta}^{K0} \sum_q (-1)^q f_q^K \Phi_{-q}^K(e'). \quad (9)$$

#### ФОРМАЛИЗАЦИЯ РЕШЕНИЯ СИСТЕМЫ УРАВНЕНИЙ

Систему уравнений (1а), (1б) можно формально записать в матричном виде

$$\dot{\Psi} = D\Psi + B. \quad (10)$$

Здесь  $\Psi$  — матрица-столбец, включающая в себя упорядоченный набор величин  $\varphi_q^K$  и  $f_q^K$ ,  $D$  — комплексная квадратная матрица коэффициентов,  $B$  — матрица-столбец свободных членов. Последняя имеет только два ненулевых элемента, соответствующие уравнениям для  $\varphi_0^0$  и  $f_0^0$  (см. (1а), (1б)) и равные  $\lambda_q^K \delta_{q0} \delta_{K0}$ ,  $\Lambda_q^K \delta_{K0} \delta_{q0}$  соответственно.

Для уменьшения размерности решаемой системы уравнений можно воспользоваться тем обстоятельством, что в реальных физических условиях эксперимента величина моментов  $\varphi_q^K$  и  $f_q^K$  убывает с ростом ранга и стремится к нулю при больших значениях  $q$ ,  $K$ . Поэтому систему (10) можно «обсекать», не учитывая уравнения для моментов с  $q$ ,  $K$  больше некоторого предельного значения. Величину этого предела можно определить для конкретной задачи по сходимости решения при увеличении значений  $q$ ,  $K$ , и он тем выше, чем больше параметры  $\Gamma_p/\gamma_K$ ,  $\Gamma_p/\Gamma_K$ , характеризующие нелинейность поглощения света.

Используя совпадение правых частей равенств (7) и (8), можно получить ряд свойств симметрии матрицы  $D$ . Во-первых, матрица разделяется на четыре в общем случае не совпадающих по размерности блока (рис. 1). У этих блоков перекрывающиеся части при совмещении левых верхних углов совпадают с точностью до знака, на рис. 1 условно изображенного в кружке. Исключением являются диагональные элементы, о расчете которых будет сказано ниже. За основу расчета матрицы  $D$  следует взять больший блок, например левый верхний на рис. 1. Его члены (за исключением диагональных) могут быть рассчитаны, следуя выражению

$${}^n D_q^K = -\Gamma_p \sum_{x \neq q} {}^n A^{xK} C_{x \neq q}^{Kq} \Phi_x^x. \quad (11)$$

Здесь левые индексы указывают на строку, а правые — на столбец матрицы. Недиагональные члены других блоков получаются из большего блока операцией совмещения и соответствующего изменения знаков. Диагональные члены могут быть получены, если добавить к (11) в первом блоке члены  $-(\gamma_K - i\omega q)$ , во втором блоке  $\Gamma_p/\gamma_K$ , в третьем

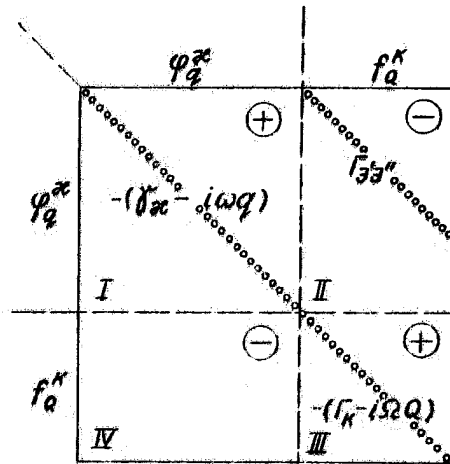


Рис. 1. Структура матрицы коэффициентов  $D$  в уравнении (10)

блоке  $-(\Gamma_k - i\Omega Q)$  (см. рис. 1). Диагональ четвертого блока рассчитывается по формуле (11) без добавлений диагональных элементов. Внутри одного блока элементы подчиняются следующему свойству симметрии:

$${}^*D_q^* = \left( \frac{\Pi_k^*}{\Pi_k} \right)^2 \left( {}^*D_q^* \right)^* \quad (12)$$

Учитывая все сказанное, ясны пути, позволяющие создать достаточно экономную по времени и оперативной памяти ЭВМ программу, которая делает возможным решение системы (10) на вычислительных машинах класса ЕС-1022.

### ПРИМЕР РАСЧЕТА

В качестве примера расчета можно рассмотреть эффект Ханле основного электронного состояния двухатомных молекул [9]. Суть эффекта заключается в том, что при взаимно ортогональном направлении направления распространения линейно-поляризованного света, внешнего магнитного поля и направления наблюдения (рис. 2) в величине степени поляризации флуоресценции с возбужденного уровня, определяемой как

$$P = \frac{I_{\parallel} - I_{\perp}}{I_{\parallel} + I_{\perp}}, \quad (13)$$

появляется определенная зависимость от магнитного поля (рис. 3, б), обусловленная разрушением когерентности между зеемановскими подуровнями основного состояния молекул. К описанному эффекту также примешивается традиционный эффект Ханле возбужденного состояния, обусловленный разрушением когерентности зеемановских подуровней в возбужденном состоянии. В (1а), (1б) разрушение этих когерентностей отражается как разрушение соответствующих поляризационных моментов.

Используя изложенный в данной работе метод, система уравнений

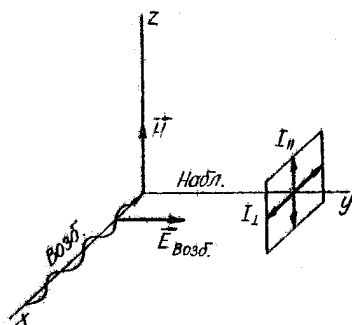


Рис. 2. Геометрия эксперимента работы [9]

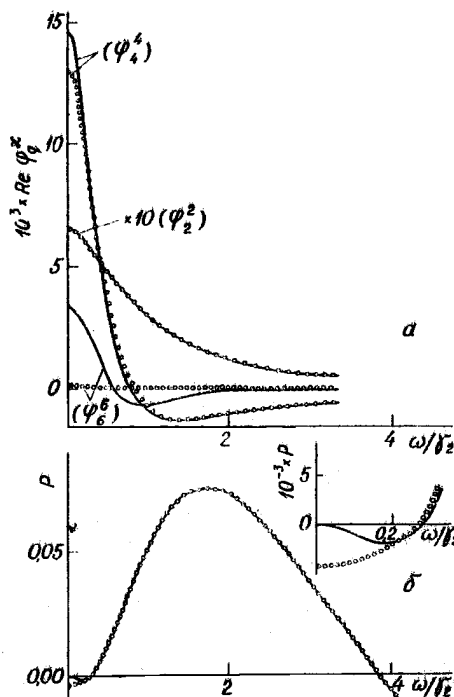


Рис. 3. Действительные части поляризационных моментов различного ранга (а) и соответствующие сигналы Ханле (б)

(1а), (1б) решалась нами в [11] для параметров эксперимента на  $K_2$  [9] при возбуждении He—Ne лазером (632,8 нм) перехода ( $v''=1$ ,  $J''=72$ )  $X^1\Sigma_g^+ \rightarrow (v'=8$ ,  $J'=72)$   $B^1\Pi_u$ , а именно:  $\Gamma_p=10^6$  с<sup>-1</sup>,  $\Gamma_k=8,62 \cdot 10^7$  с<sup>-1</sup>,  $\Omega=1,67 \cdot 10^3 \cdot H$  с<sup>-1</sup>,  $\omega=1,04 \cdot 10^2 \cdot H$  с<sup>-1</sup>, где  $H$  — в гауссах. Так как эксперимент проводился в стационарном режиме, возбуждения и наблюдения, в системе (1а), (1б) полагалось  $f_q^k = \phi_q^k = 0$ . На рис. 3,а приведены действительные части моментов нижнего уровня  $\text{Re} \phi_{\pm 2}^2$ ,  $\text{Re} \phi_{\pm 4}^4$ ,  $\text{Re} \phi_{\pm 6}^6$ , рассчитанные при одинаковых  $\gamma_k = 0,3 \cdot 10^6$  с<sup>-1</sup> (сплошная кривая) и для  $\gamma_{k < 6} = 0,3 \cdot 10^6$  с<sup>-1</sup>,  $\gamma_6 = 0,3 \cdot 10^8$  с<sup>-1</sup> (пунктирная кривая). Численное моделирование показало, что при данных параметрах эксперимента моменты более высокого ранга ( $K, k \geq 8$ ) не вносят существенного вклада в зависимость степени поляризации от магнитного расщепления. Из рис. 3,а видно, что в случае  $\gamma_6 \gg \gamma_{0,2,4}$  момент  $\phi_{\pm 6}^6$  практически не возникает из-за его более быстрой релаксации, а остальные моменты практически одинаковы в обоих случаях.

На рис. 3,б приведены сигналы Ханле, рассчитанные подстановкой в (13) полученных решением (10) зависимостей поляризационных моментов от магнитного поля  $H$ . При рассматриваемой геометрии  $P(0) = 0$ ; возрастание  $P$  с ростом  $\omega$  есть проявление эффекта Ханле от нижнего уровня, а последующее убывание — от верхнего. Видно, что вместе с шестым моментом  $\phi_{\pm 6}^6$  пропадает и дополнительный узкий пик на рис. 3,б показан отдельно вблизи нуля. Следовательно, его нужно интерпретировать как результат разрушения полем момента с  $k=6$ , а не  $k=4$ , как это предполагалось в работе [9], следуя интерпретации, предложенной на основе классического расчета автором работы [10]. Так как проявление момента  $\phi_{\pm 6}^6$  в сигнале Ханле от основного состояния однозначно указывает на когерентность между магнитными подуровнями с  $\Delta M_{J''} = 6$ , то кажется правомерным заключение, что авторами работы [9] впервые обнаружено проявление когерентности шестого порядка.

В заключение считаю приятным долгом выразить благодарность Р. С. Ферберу за плодотворные дискуссии, приведшие к появлению настоящей работы.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Fano U. Description of states in quantum mechanics by density matrix and operator techniques. — Rev. Mod. Phys., 1957, vol. 29, p. 74—93.
2. Эдмондс А. Р. Угловые моменты в квантовой механике. — В кн.: Деформация атомных ядер. М., ИИЛ, 1958, с. 305—351.
3. Дьяконов М. И. К теории резонансного рассеяния света в газе при наличии магнитного поля. — ЖЭТФ, 1964, т. 47, с. 2213—2221.
4. Чайка М. П. Интерференция вырожденных атомных состояний. Л., изд. ЛГУ, 1975. 192 с.
5. Omont A. Irreducible components of the density matrix. Application to optical pumping. — Prog. Quant. El., 1977, vol. 5, p. 69—138.
6. Котликов Е. Н., Кондратьева В. А. Влияние сильного электромагнитного поля на форму сигналов пересечения в нулевых магнитных полях. — Опт. и спектр., 1980, т. 48, с. 667—674.
7. Ferber R. S., Okunevich A. I., Shmit O. A., Tamaniš M. Ya. Lande factor measurements for  $^{130}\text{Te}_2$  electronic ground state. — Chem. Phys. Lett., 1982, vol. 90, p. 476—480.
8. Варшавович Д. А., Москалев А. Н., Херсонский В. К. Квантовая теория углового момента. Л., Наука, 1975. 439 с.
9. Ferber R. S., Shmit O. A., Tamaniš M. Ya. Ground state Hanle effect in optically aligned diatomic molecules  $\text{Na}_2$  and  $\text{K}_2$ . — Chem. Phys. Lett., 1979, vol. 61, p. 441—444.
10. Ducloy M. Non-linear effects in optical pumping with lasers. I. General theory of the classical limit for levels of large angular moments. — J. Phys. B; Atom. Molec. Phys., 1976, vol. 9, p. 357—381.
11. Аузиньш М. П., Фербер Р. С. Проявление поляризационного момента шестого ранга в сигнале Ханле основного электронного состояния димеров. — Опт. и спектр., 1983, т. 55, с. 1105.

---

ON THE SOLUTION OF RATE EQUATIONS FOR POLARISATION  
MOMENTS IN CASE OF LARGE ANGULAR MOMENTS

M. Auzin'sh

Summary

Asymptotical rate equations for polarisation moments have been obtained for the case of large angular moments of optically coupled levels. Formalisation of solution for these equations has been performed. An example of calculation of Hanle effect is presented in order to demonstrate the viability of the developed approach.

Поступило 5 IV 1983 г.