

ФИЗИКА АТОМНОГО ЯДРА И
СПЕКТРОСКОПИЯ АТОМОВ И МОЛЕКУЛ

УДК 539.184.28

М. П. Аузиньш, Р. С. Фербер

КЛАССИЧЕСКОЕ ОПИСАНИЕ ОПТИЧЕСКОЙ НАКАЧКИ
С РАЗЛОЖЕНИЕМ ПО МУЛЬТИПОЛЯМ

Латвийский государственный университет им. П. Стучки

ВВЕДЕНИЕ

Для описания экспериментов по оптической накачке атомов и молекул, пересечению уровней в магнитном поле и родственных исследований, предпринимаемых с целью определить различные релаксационные характеристики и магнитные постоянные уровней, широко используется формализм матрицы плотности в варианте поляризационных моментов [1]. Однако в случае, когда оптические переходы происходят между состояниями с большими угловыми моментами и возбуждение нелинейно по световому полю, такое описание громоздко, что существенно сужает класс задач, которые могут быть решены до конца. На пути преодоления этих трудностей определенные результаты были достигнуты с использованием асимптотических уравнений движения поляризационных моментов в случае больших значений углового момента [2].

С другой стороны, для исследования объектов с большим угловым моментом, например, макромолекул, часто используется классический аналог матрицы плотности — плотность вероятности (в частности см. [3]). Интересные результаты были достигнуты с помощью кинетических уравнений для матрицы плотности, в которых ориентационное состояние угловых моментов уровней описывается классически [4]. С точки зрения применения плотности вероятности для описания нелинейной оптической накачки в присутствии внешнего магнитного поля наиболее авторитетной является работа Дюклоя [5]. Однако автором этой работы при относительно неудобной форме полученных уравнений движения (в частных производных) плотности вероятности не учитывалась возможная симметрия столкновительных процессов, а также не рассматривался случай возбуждения циркулярно поляризованным светом. Такой подход не только сужает область применения полученных уравнений, но и затрудняет интерпретацию их решений [6], а иногда, как показано в [7], может приводить даже к ошибочному толкованию результатов эксперимента.

Поэтому представляется актуальной дальнейшая разработка аппарата плотности вероятности для применения его в экспериментах по нелинейной оптической накачке частиц с большим угловым моментом. Здесь наиболее естественным подходом, учитывающим симметрию процессов, участвующих в оптической накачке, представляется разложение плотности вероятности по мультиполям. Такой метод близок к подходу, применяемому при разложении матрицы плотности по неприводимым тензорным операторам при введении поляризационных моментов. (Сферические функции $Y_{kq}(\Omega)$, применяемые при мультипольном разложении, являются ковариантными компонентами неприводимого тензора ранга k .) По этой причине асимптотические уравнения движения

поляризационных моментов и уравнения движения мультипольных моментов должны оказаться близкими по физическому смыслу (принцип соответствия). Сравнение обоих подходов может углубить понимание как одного, так и другого.

ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

В классической статистической механике состояние системы задается плотностью вероятности ρ того, что рассматриваемая система в определенный момент времени находится в определенной точке фазового пространства, т. е. пространства обобщенных координат и импульсов. Однако в оптических экспериментах очень часто ρ рассматривают как величину, зависящую не от этих переменных, а от сферических углов θ , φ , характеризующих ориентацию в трехмерном физическом пространстве классического углового момента J . Таким образом величина $\rho(\theta, \varphi, t) \sin \theta d\theta d\varphi$ есть вероятность того, что вектор J в момент времени t расположен в интервале углов $\theta, \theta + d\theta$; $\varphi, \varphi + d\varphi$.

Рассмотрим уравнения движения для плотности вероятности в случае двухуровневой системы, находящейся в резонансе с возбуждающим светом, поляризованным вдоль единичного вектора e . Нижний уровень a и верхний b будем характеризовать соответствующими плотностями вероятностей $\rho_\alpha(\Omega, t)$, где $\alpha = a$ или b , а $\Omega = \{\theta, \varphi\}$. Пусть к системе приложено также постоянное магнитное поле H , направленное вдоль оси z . Тогда уравнения движения функций ρ_α могут быть представлены в виде

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_a(\Omega, t) = \lambda_a - \int_{\Omega'} \gamma_a(\Omega, \Omega') \rho_a(\Omega', t) d\Omega' - \omega_a \frac{\partial}{\partial \varphi} \rho_a(\Omega, t) + \\ + \int_{\Omega'} \gamma_{ba}(\Omega, \Omega') \rho_b(\Omega', t) d\Omega' + \Gamma_p \int_{\Omega'} G'_1(\Omega, \Omega') \rho_b(\Omega', t) d\Omega' - \Gamma_p G_2(\Omega) \rho_a(\Omega, t), \end{aligned} \quad (1a)$$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_b(\Omega, t) = \lambda_b - \int_{\Omega'} \gamma_b(\Omega, \Omega') \rho_b(\Omega', t) d\Omega' - \omega_b \frac{\partial}{\partial \varphi} \rho_b(\Omega, t) + \\ + \Gamma_p \int_{\Omega'} G'_2(\Omega, \Omega') \rho_a(\Omega', t) d\Omega' - \Gamma_p G_1(\Omega) \rho_b(\Omega). \end{aligned} \quad (1b)$$

Система (1a), (1b) есть более детализованная запись системы уравнений, полученной в [5]. Здесь λ_a, λ_b описывают заселение соответствующих уровней вследствие процессов, не зависящих от углов θ, φ , например, при изотропных столкновениях с атомами буферного газа. Функции $\gamma_\alpha(\Omega, \Omega')$ характеризуют распад состояний под воздействием процессов, которые в общем случае неизотропны, а также изменение плотности вероятности вследствие релаксационных процессов, не меняющих полную вероятность обнаружения частицы в данном состоянии, например, деориентирующих столкновений. Константы ω_α есть частоты ларморовской прецессии угловых моментов J_α во внешнем магнитном поле, а члены $\omega_\alpha \frac{\partial \rho_\alpha}{\partial \varphi}$ определяют скорость изменения ρ_α в результате этой прецессии. Функция $\gamma_{ba}(\Omega, \Omega')$ описывает распад уровня b путем излучательного перехода $b \rightarrow a$. Наконец, члены, пропорциональные $\Gamma_p G_2(\Omega)$ и $\Gamma_p G'_2(\Omega, \Omega')$, характеризуют скорость и угловую зависимость поглощения, а члены, пропорциональные $\Gamma_p G_1(\Omega)$ и $\Gamma_p G'_1(\Omega, \Omega')$ — вынужденного испускания света.

Чтобы сделать возможным и наиболее простым учет пространственной симметрии процессов, участвующих в оптической накачке, разложим плотность вероятности $\rho_\alpha(\Omega, t)$ по мультиполям.

$$\rho_\alpha(\Omega, t) = (4\pi)^{-1/2} \sum_{K=0}^{\infty} \sum_{Q=-K}^K \Pi_{K\alpha} \rho_{KQ}^\alpha(t) Y_{KQ}^*(\Omega), \quad (2)$$

где $\Pi_K = (2K+1)^{1/2}$, а фаза в сферических функциях Y_{KQ} выбрана согласно [8]. Разложение мы провели таким образом, чтобы мультипольные моменты $\alpha\rho_{KQ}^\alpha$ и сферические функции Y_{KQ} оказались ковариантными. Тогда $\alpha\rho_{KQ}^\alpha$ пропорциональны среднему значению $\langle Y_{KQ} \rangle$ в состоянии α . Отсюда очевиден физический смысл коэффициентов разложения. Например, $\alpha\rho_{00}^\alpha$ есть полная вероятность обнаружения частицы в состоянии α , а момент $\alpha\rho_{KQ}^\alpha = |J|^{-1} \alpha\rho_{00}^\alpha \langle J_Q \rangle$ пропорционален Q -компоненте среднего углового момента в рассматриваемом состоянии. Обратное к (2) соотношение имеет вид

$$\alpha\rho_{KQ}^\alpha = (4\pi)^{1/2} \Pi_K^{-1} \int_{\Omega} \rho_\alpha(\Omega, t) Y_{KQ}(\Omega) d\Omega. \quad (3)$$

Разложение (2) можно рассматривать как переход в ρ_α от непрерывных переменных θ, φ к дискретным K, Q . При этом функции Y_{KQ}^* играют роль матриц преобразования. Дальнейшей задачей будем считать переход от уравнений движения для $\rho_\alpha(\Omega, t)$ к уравнениям движения для $\alpha\rho_{KQ}^\alpha$.

УРАВНЕНИЯ ДВИЖЕНИЯ МУЛЬТИПОЛЬНЫХ МОМЕНТОВ

Рассмотрим по отдельности описание процессов, участвующих в оптической накачке.

1. Неизотропная релаксация функции $\rho_\alpha(\Omega, t)$ как уже было сказано, описывается посредством

$$\dot{\rho}_\alpha(\Omega, t)_{\text{рел}} = - \int_{\Omega'} \gamma_\alpha(\Omega, \Omega') \rho_\alpha(\Omega', t) d\Omega'.$$

Переходя в этом выражении к мультипольным моментам, получаем

$$\dot{\Pi_{K\alpha} \rho_{KQ}^\alpha} = - \int_{\Omega} \sum_{K'Q'} \Pi_{K'\alpha} \rho_{K'Q'}^\alpha \int_{\Omega'} \gamma_\alpha(\Omega, \Omega') Y_{K'Q'}^*(\Omega') Y_{KQ}(\Omega) d\Omega' d\Omega. \quad (4)$$

Это выражение можно упростить, рассмотрев свойства симметрии релаксационных процессов. Например, при упругих, изотропных по направлениям скоростей столкновениях с буферным газом $\gamma_\alpha(\Omega, \Omega')$ зависит только от угла Θ между направлением вектора \mathbf{J}_α до столкновения (определяют углы $\Omega' = \{\theta', \varphi'\}$) и после него (определяют углы $\Omega = \{\theta, \varphi\}$), но не зависит от конкретных значений Ω и Ω' . Если столкновения неупругие, т. е. уводящие частицу из состояния α , то $\gamma_\alpha(\Omega, \Omega')$ вообще не зависит от ориентации \mathbf{J}_α . Совместное действие обоих процессов может описываться функцией $\gamma_\alpha(\Theta)$, которую удобно разложить по биполярным гармоникам [8]

$$\gamma_\alpha(\Theta) = \sum_{K''=0}^{\infty} \alpha \gamma_{K''} \sum_{Q''=-K''}^{K''} Y_{K''Q''}(\Omega') Y_{K''Q''}^*(\Omega). \quad (5)$$

Подставляя (5) в (4), получаем

$$(\alpha \rho_Q^K)_{\text{рел}} = -\alpha \gamma_{\alpha} \rho_Q^K.$$

В случае, когда упругие столкновения могут быть исключены из рассмотрения, последнее соотношение еще более упрощается, и мы получаем $(\alpha \dot{\gamma}_Q^K)_{\text{рел}} = -\alpha \gamma_{\alpha} \rho_Q^K$. В этом случае все мультипольные моменты релаксируют с одинаковой скоростью. Такая же ситуация реализуется в случае распада состояния α в результате спонтанного испускания. Скорость этого процесса так же, как и скорость неупругих столкновений с изотропным буферным газом, не зависит от ориентации J_{α} .

2. Спонтанный распад состояния b в состояние a описывается в (1а), (1б) функцией $\gamma_{ba}(\Omega, \Omega')$. Если ограничиться рассмотрением электрических дипольных переходов, то изменение классического углового момента системы J_{α} в результате перехода из состояния b в состояние a ничтожно мало, и поворотом J_{α} в таком процессе можно пренебречь, что приводит к $\gamma_{ba}(\Omega, \Omega') = \gamma_{ba}(\Omega) \delta(\Omega - \Omega')$. Так как спонтанный распад инвариантен к повороту системы координат, то $\gamma_{ba}(\Omega) = \text{const}$. Вследствие сказанного получаем

$$(\alpha \rho_Q^K)_{\text{сп}} = \gamma_{abb} \rho_Q^K.$$

3. Взаимодействие ансамбля с возбуждающим светом проявляется как поглощение и вынужденное испускание. Это взаимодействие описывается посредством

$$\dot{\rho}_{\alpha}(\Omega, t)_{\text{свет}} = \pm \Gamma_p \int_{\Omega'} G'(\Omega, \Omega') \rho_{-\alpha}(\Omega') d\Omega' \mp \Gamma_p G(\Omega) \rho_{\alpha}(\Omega), \quad (6)$$

где знаки в правой части выражения выбираются в зависимости от значения индекса в левой части (см. (1а), (1б)). При дипольных переходах, как и в случае спонтанного испускания, можно положить $G'(\Omega, \Omega') = G'(\Omega) \delta(\Omega - \Omega')$. В этом приближении угловые зависимости поглощения и вынужденного испускания совпадают, и $G(\Omega) = G'(\Omega)$. Согласно [5], явный вид $G(\Omega)$ можно получить, рассчитав выражения

$$G(\Omega) = |\mathbf{e} \cdot \mathbf{n}_{J_a - J_b}|^2. \quad (7)$$

Здесь \mathbf{e} и $\mathbf{n}_{J_a - J_b}$ — единичные векторы, характеризующие поляризацию возбуждающего света и направление дипольного момента перехода. Как показал Дюклой [5], в системе координат, связанной с вектором углового момента J_{α} , вектор $\mathbf{n}_{J_a - J_b}$ для Q перехода параллелен J_{α} , а для P либо R переходов вращается по часовой стрелке либо против нее. Для написания явного вида (7) с помощью D -матриц Вигнера [8] совместим ось z и направление $J_{\alpha}(\theta, \varphi)$. Тогда в системе координат, связанной с осью z ,

$$G(\Omega) = \left| \sum_q (-1)^q e_{-q} n_q \right|^2 = \left| \sum_q (-1)^q e_{-q} D_{q, J_a - J_b}^{(1)}(\varphi, \theta, 0) \right|^2, \quad (7a)$$

где e_q, n_q — циклические компоненты соответствующих векторов. Явный вид матриц Вигнера приведен в табл. 1. Применяя разложение (3) к функции $G(\Omega)$ в виде (7а), получим мультипольные моменты G_{ξ}^X . При этом, учитывая явный вид $D_{q, J_a - J_b}^{(1)}$, можно показать, что $G_{\xi}^X \equiv 0$ при $X > 2$,

Таблица 1

| $D_Q^{(1)} J_a - J_b (\varphi, \theta, 0)$ | | | |
|--|---|---|---|
| $Q \backslash J_a - J_b$ | 1 | 0 | -1 |
| 1 | $e^{-i\varphi} \frac{1 + \cos \theta}{2}$ | $-e^{-i\varphi} \frac{\sin \theta}{\sqrt{2}}$ | $e^{-i\varphi} \frac{1 - \cos \theta}{2}$ |
| 0 | $\frac{\sin \theta}{\sqrt{2}}$ | $\cos \theta$ | $-\frac{\sin \theta}{\sqrt{2}}$ |
| -1 | $e^{i\varphi} \frac{1 - \cos \theta}{2}$ | $e^{i\varphi} \frac{\sin \theta}{\sqrt{2}}$ | $e^{i\varphi} \frac{1 + \cos \theta}{2}$ |

Теперь перейдем в (6) от непрерывных функций к их мультипольным моментам

$$\begin{aligned} \Pi_K (\alpha \rho_Q^K)_{\text{свет}} = \pm \Gamma_p (4\pi)^{-\frac{1}{2}} \left[\sum_{\substack{K'X \\ Q'\xi}} b \rho_{Q'K'} G_{\xi}^{XK'} \Pi_{K'} \Pi_X \int_{\Omega} Y_{X\xi}^*(\Omega) Y_{K'Q'}^*(\Omega) \times \right. \\ \left. \times Y_{KQ}(\Omega) d\Omega - \sum_{\substack{K'X \\ Q'\xi}} a \rho_{Q'K'} G_{\xi}^{XK'} \Pi_{K'} \Pi_X \int_{\Omega} Y_{X\xi}^*(\Omega) Y_{K'Q'}^*(\Omega) Y_{KQ}(\Omega) d\Omega \right]. \quad (8) \end{aligned}$$

Для дальнейших преобразований используем известное соотношение [8]

$$\int_{\Omega} Y_{l_1 m_1}(\Omega) Y_{l_2 m_2}^*(\Omega) Y_{l_3 m_3}^*(\Omega) d\Omega = \frac{\Pi_{l_2} \Pi_{l_3}}{(4\pi)^{1/2} \Pi_{l_1}} C_{l_2 0 l_3 0}^{l_1 0} C_{l_2 m_2 l_3 m_3}^{l_1 m_1}, \quad (9)$$

в котором посредством $C_{l_2 m_2 l_3 m_3}^{l_1 m_1}$ обозначен коэффициент Клебша—Гордана. С помощью (9) выражение (8) может быть переписано в виде

$$(\alpha \rho_Q^K)_{\text{свет}} = \pm \Gamma_p \sum_{K'X} \frac{\Pi_X^2 \Pi_{K'}^2}{4\pi \Pi_{K'}^2} C_{X0K'0}^{K0} [\{G^{(X)} \otimes b \rho^{(K')}\}_Q^K - \{G^{(X)} \otimes a \rho^{(K')}\}_Q^K],$$

где $\{G^{(X)} \otimes a \rho^{(K')}\}_Q^K = \sum_{\xi Q'} C_{X\xi K'Q'}^{KQ} G_{\xi}^{XK'} a \rho_{Q'K'}$ — неприводимое тензорное произведение.

4. Суммируя выражения, полученные для описания отдельных процессов, участвующих в оптической накачке, получаем общую систему уравнений, эквивалентную системе (1а), (1б)

$$\begin{aligned} a \rho_Q^K = \lambda_a \delta_{K0} - a \gamma_{Ka} \rho_Q^K - i \omega_a Q a \rho_Q^K + \gamma_{b a b} \rho_Q^K + \\ + \Gamma_p \sum_{K'X} \frac{\Pi_X^2 \Pi_{K'}^2}{4\pi \Pi_{K'}^2} C_{X0K'0}^{K0} [\{G^{(X)} \otimes b \rho^{(K')}\}_Q^K - \{G^{(X)} \otimes a \rho^{(K')}\}_Q^K], \quad (10a) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} b \rho_Q^K = \lambda_b \delta_{K0} - b \gamma_{Kb} \rho_Q^K - i \omega_b Q b \rho_Q^K - \\ - \Gamma_p \sum_{K'X} \frac{\Pi_X^2 \Pi_{K'}^2}{4\pi \Pi_{K'}^2} C_{X0K'0}^{K0} [\{G^{(X)} \otimes b \rho^{(K')}\}_Q^K - \{G^{(X)} \otimes a \rho^{(K')}\}_Q^K]. \quad (10б) \end{aligned}$$

При учете влияния магнитного поля использованы выражения для производных сферических функций $\partial Y_{KQ}(\Omega) / \partial \varphi = i Q Y_{KQ}(\Omega)$. Получен-

Таблица 2

| $\alpha^j_{Q^K}$ | $\alpha\rho_{Q^K}$ |
|--|--|
| α^0_0 — заселенность уровня α $\alpha^1_Q = \frac{\langle \alpha^j_Q \rangle (-1)^Q}{ \alpha^j }$, где $\langle \alpha^j_Q \rangle$ — Q -компонента суммарного углового момента ансамбля частиц | $\alpha\rho^0_0$ — вероятность обнаружения частицы на уровне α $\alpha\rho^1_Q = \frac{\langle \alpha^j_Q \rangle}{ \alpha^j } \alpha\rho^0_0$, где $\langle \alpha^j_Q \rangle$ — Q -компонента среднего углового момента, отнесенная к одной частице |

ные уравнения как по форме, так и по смыслу очень близки к асимптотическим уравнениям для поляризационных моментов [2]. Главное их отличие — в описании возбуждающего света. Примененные в данной работе мультипольные моменты G_{ξ}^X получаются в результате единой формы мультипольного разложения (3), в то время как в [2] для описания возбуждающего света использовались коэффициенты Φ_{ξ}^X , введенные Дьяконовым [9] и связанные с G_{ξ}^X посредством

$$G_{\xi}^X = (-1)^{J_a - J_b} \Pi_X^{-1} C_{1J_b - J_a, 1J_a - J_b}^{X0} \Phi_{\xi}^X.$$

Вторая причина отличия асимптотических уравнений движения поляризационных моментов f_Q^K , определенных как в [9], и уравнений движения мультипольных моментов $\alpha\rho_Q^K$ кроется в некоторых различиях физического смысла этих моментов. Их сравнение для ранга $K=0,1$ дано в табл. 2.

РАСЧЕТ НАБЛЮДАЕМЫХ СИГНАЛОВ

Величины $\alpha\rho_Q^K$ непосредственно в эксперименте не наблюдаются. В оптических исследованиях, как правило, регистрируется флуоресценция или поглощение света определенной поляризации. Получим выражение для этих сигналов, предполагая, что нам посредством решения системы (10а), (10б) известны мультипольные моменты $\alpha\rho_Q^K$.

Начнем с сигнала флуоресценции при переходе из состояния α в произвольное конечное состояние. Аналогично функции $G(\Omega)$, определенной выражением (7), введем функцию $F(\Omega)$, описывающую свет, регистрируемый фотоприемником. В данном случае e' — поляризация регистрируемого света, а $n'_{J_a - J_b}$ характеризует тип перехода. Производя мультипольное разложение $F(\Omega)$ аналогично (2), получим F_Q^K , для которых в случае дипольных переходов так же, как и для G_{ξ}^X , можно доказать, что $F_Q^K \equiv 0$ при $K > 2$. Тогда интенсивность флуоресценции с уровня α , имеющая поляризацию β , есть

$$I_{\alpha\beta}^j = I_0^j \int_{\Omega} \alpha\rho(\Omega) F(\Omega) d\Omega = I_0^j \frac{1}{4\pi} \sum_{K=0}^2 \sum_{Q=-K}^K \Pi_{K^2} \alpha\rho_Q^K F_{-Q}^K (-1)^Q, \quad (11)$$

где I_0^j — коэффициенты пропорциональности.

Аналогично можно получить интенсивность слабого пробного света $I_{\alpha\beta}^{abs}$, поглощенную в результате перехода системы из состояния α в произвольное состояние

$$I_{\alpha\beta}^{abs} = I_0^{abs} \frac{1}{4\pi} \sum_{K=0}^2 \sum_{Q=-K}^K \Pi_{K^2} \alpha\rho_Q^K A_{-Q}^K (-1)^Q, \quad (12)$$

где I_0^{abs} — коэффициент пропорциональности, а мультипольные моменты A_Q^K описывают тип перехода и поляризацию поглощенного света. Они определяются аналогично F_Q^K и имеют те же свойства.

В заключение авторы выражают признательность А. И. Окуневичу за полезные замечания, высказанные при обсуждении настоящей статьи.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Omont A. Irreducible components of the density matrix. Application to optical pumping. — Prog. Quant. El., 1977, vol. 5, p. 69—138.
2. Аузиньш М. П. О решении уравнений движения поляризационных моментов для больших значений углового момента. — Изв. АН ЛатвССР. Сер. физ. и техн. наук, 1984, № 1, с. 9—16.
3. Тао Т. Time-dependent fluorescence depolarisation and Brownian rotational diffusion coefficients of macromolecules. — Biopolimers, 1969, vol. 8, p. 609—632.
4. Насыров К. А., Шалагин А. М. Взаимодействие интенсивного излучения с атомами и молекулами при классическом вращательном движении. — ЖЭТФ, 1981, т. 81, с. 1649—1663.
5. Ducloy M. Application du formalisme des etats coherents de moment angulaire a quelques problemes de physique atomique. — J. de Physique. Paris, 1975, t. 36, p. 927—941.
6. 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.
7. 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—1108.
8. Варшалович Д. А., Москалев А. Н., Херсонский В. К. Квантовая теория углового момента. Л., Наука, 1975. 439 с.
9. Дьяконов М. И. К теории резонансного рассеяния света в газе при наличии магнитного поля. — ЖЭТФ, 1964, т. 47, с. 2213—2221.

CLASSICAL TREATMENT OF OPTICAL PUMPING BY EXPANSION TO MULTIPOLES

M. Auzin'sh, R. Ferber

Summary

Classical formalism of probability densities has been applied for treating nonlinear optical pumping of gas phase systems with large values of angular momentum and for accounting of magnetic field effects. A set of kinetic equations for multipole moments has been obtained by means of expansion to multipoles and neglecting translational motion of particles. The classical equations are compared with those obtained by means of quantum mechanical formalism of polarization moments in the asymptotic limit of large angular momenta.

Поступило 11 VII 1984 г.