

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ РИДБЕРГОВСКИХ АТОМОВ В ЦИРКУЛЯРНЫХ СОСТОЯНИЯХ С АТОМАМИ ЩЕЛОЧНОЗЕМЕЛЬНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ $\text{Ca}(4s^2)$ И $\text{Sr}(5s^2)$

Е. С. Мирончук^b, А. А. Нарич^{a,b}, В. С. Лебедев^{a,b}*

^a *Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
119991, Москва, Россия*

^b *Московский физико-технический институт (государственный университет)
141700, Долгопрудный, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 28 мая 2015 г.

Проведено изучение резонансного механизма взаимодействия щелочноземельных атомов с малой энергией сродства к электрону и ридберговских атомов в циркулярных ($l = |m| = n - 1$) и околоциркулярных состояниях. Для описания динамики резонансных процессов, сопровождающихся неадиабатическими переходами между ионным и ридберговским ковалентным термами квазимолекулы, развит подход, основанный на интегрировании связанных уравнений для амплитуд вероятностей с учетом возможности распада аниона в кулоновском поле положительного ионного остова высоковозбужденного атома. Подход учитывает специфические особенности задачи, связанные со структурой волновой функции ридберговского электрона в состояниях с большими значениями орбитального момента $l \sim n - 1$. На его основе удается существенно более точным образом, чем в рамках модифицированной квазиклассической модели Ландау–Зинера, описать динамику электронных переходов, происходящих при столкновениях атомов, и эффективным образом учесть многоканальность задачи. Рассчитаны сечения резонансного опустошения ридберговских состояний атома $\text{Li}(nlm)$ с заданными значениями главного n , орбитального $l = n - 1$ и магнитного m квантовых чисел при тепловых столкновениях с атомами $\text{Ca}(4s^2)$ и $\text{Sr}(5s^2)$. Получены зависимости результатов от значений n , m и угла α между вектором относительной скорости атомов и нормалью к плоскости орбиты ридберговского электрона. Исследовано влияние ориентационных эффектов на эффективность процесса столкновительного разрушения циркулярных и околоциркулярных состояний. Результаты свидетельствуют о большей устойчивости таких состояний по отношению к их возмущению нейтральными частицами по сравнению с обычно изучаемыми nl -состояниями с малыми значениями $l \ll n$.

DOI: 10.7868/S0044451015110085

1. ВВЕДЕНИЕ

При исследовании радиационных и столкновительных процессов с участием высоковозбужденных атомов [1, 2] и эффектов их взаимодействия с нейтральными и заряженными частицами, а также с внешними полями в большинстве работ рассматривались два типа условий возбуждения ридберговских состояний [3–7]. Первый тип соответствует случаю равномерно заселенных вырожденных водородоподобных lm -подуровней внутри данного уровня с главным квантовым числом n . Этот тип возбужде-

ния особенно интересен для кинетики электрон-ионной рекомбинации и релаксации энергии по высоковозбужденным уровням в газах и плазме [8]. Во втором случае ридберговские атомы приготавливают в селективно возбужденных состояниях nl со значениями $l \ll n$ (ns -, np -, nd - и nf -состояния), используя методы лазерной спектроскопии высокого разрешения [4].

Существуют также эффективные способы приготовления ридберговских атомов в циркулярных и эллиптических состояниях. Циркулярные и эллиптические ридберговские состояния — это особые виды состояний атома, которые ближе всего соответствуют модели классической орбиты электрона с заданным главным квантовым числом n . Циркуляр-

*E-mail: vlebedev@sci.lebedev.ru

ное состояние характеризуется квантовыми числами $l = |m| = n - 1$ и оптимально моделирует круговую боровскую орбиту электрона. Его координатная функция распределения представляет собой тороидальную фигуру. Эллиптическое состояние является суперпозицией всего набора lm -состояний и воспроизводит эллиптическую кеплеровскую орбиту, эксцентриситет которой определяется весами lm -подуровней.

Благодаря уникальным свойствам, эти состояния применялись для исследований различных явлений, включая классические свойства квантовых объектов [9, 10], изменение спектра двухуровневого атома из-за взаимодействия с кюветой [11], контроль квантовых состояний внешними полями [12], ориентационные эффекты в столкновениях с нейтральными и заряженными частицами [13–15]. Впервые циркулярные ридберговские состояния были получены в 1983 г. [16]. За последующее десятилетие были разработаны три эффективные методики их создания [17], и к 1997 г. в циркулярных состояниях удалось приготовить большинство щелочных элементов, барий и водород [18]. Затем интерес к ним несколько угас, если не считать исследования группы S. Haroche, которая занималась изучением эффектов взаимодействия излучения одиночных атомов в циркулярных состояниях с модами кюветы [19]. Предметом исследований в 90-х годах стали эллиптические состояния, в первую очередь ориентационные эффекты в столкновениях с перезарядкой в килоэлектронвольтовом диапазоне энергий [20]. Возрождение интереса к циркулярным и эллиптическим состояниям в последние годы связано с экспериментальными исследованиями внутриоболочечных переходов [21], волновых пакетов [22, 23] и эффектов взаимодействия ультрахолодных атомов [24]. Имеется также ряд теоретических работ по дипольной блокаде ридберговских атомов [25, 26], дважды возбужденным когерентным эллиптическим состояниям [27] и ридберговским квазимолекулам [28].

Столкновения атомов в циркулярных ридберговских состояниях с атомами инертных газов при тепловых скоростях были рассмотрены в теоретических работах [13, 14] в рамках модели квазисвободного электрона на основе импульсного приближения. Подход не учитывал всех возможных механизмов тушения циркулярных состояний. В нескольких теоретических работах [20, 29, 30] исследовался процесс переноса заряда в столкновениях высоковозбужденных атомов с положительным ионом при относительных скоростях атомов, сравнимых с орбитальной скоростью ридберговского электрона. Для рас-

чета сечений реакции в них часто применялся метод классических траекторий Монте-Карло. Указанные работы посвящены ориентационным эффектам в столкновениях. Аналогичные явления в реакциях с нейтральными мишенями, насколько нам известно, не исследовались после работ [13, 14], выполненных на основе модели квазисвободного электрона. В связи с активизацией работ в области квантовой информации и квантовой оптики (см. работы [31, 32] и приведенные там ссылки) и изучением различных способов разрушения циркулярных и околоциркулярных ридберговских состояний значительный интерес представляет также исследование других возможных механизмов взаимодействия атомов в таких состояниях с нейтральными частицами.

В данной работе изучается эффективный резонансный механизм столкновительного разрушения ридберговского nlm -состояния атомов с фиксированными значениями главного n , орбитального $l = n - 1$ и магнитного m ($0 \leq |m| \leq n - 1$) квантовых чисел нейтральными частицами, имеющими малые энергии сродства к электрону. Такой механизм тушения высоковозбужденных уровней нейтральными частицами, предложенный в работе [33], исследовался ранее [34, 35] для тепловых столкновений атомов, способных захватить электрон, с атомами в селективно возбужденных ридберговских состояниях с заданными квантовыми числами n и l (преимущественно с $l \ll n$). В этом механизме резонансное опустошение ридберговского nlm -состояния осуществляется через стадию временного образования квазимолекулы, $A^+ + B_t^-$, в ходе столкновения атомов. Первый канал исследуемой реакции — это образование ионной пары:



(подробнее см. работы [36–42] и приведенные в них ссылки). Второй канал — резонансное тушение:



Как и в случае ридберговских состояний с малыми l ($l \ll n$), рассматриваемые переходы происходят вблизи точки квазипересечения ионного и ковалентного термов квазимолекулы. Образование ионной пары реализуется, когда временно образовавшийся в ходе столкновения отрицательный ион B_t^- проходит без распада все квазипересечения с ковалентными термами $A^* + B$. В противоположном случае, когда один из этих термов $A(n'l'm') + B$ оказывается заселенным вследствие распада аниона B_t^- в поле положительного иона A^+ , реализуется резонансное тушение nlm -состояния.

Исследуемый механизм является альтернативным способом девозбуждения ридберговских состояний по отношению к механизму квазиупругих и неупругих переходов, вызванных рассеянием слабо-связанного электрона на возмущающей нейтральной частице [4, 5]. Этот традиционный механизм, предложенный Ферми [43], был предметом интенсивных исследований в связи с изучением квазиупругого процесса l -перемешивания [44–46], разнообразных типов неупругих переходов между высоковозбужденными уровнями [47–58] и ионизации ридберговских атомов [59].

В работе [35] было показано, что механизм Ферми разрушения ридберговского nl -состояния атома с малым сродством к электрону доминирует при высоких главных квантовых числах. Если же величина n не слишком большая, то доминирующим механизмом снятия возбуждения становится резонансное тушение [33]. Отметим, что исследуемый здесь механизм резонансного тушения отличается и от механизма неупругих переходов и ионизации, описанных в работах [60–64]. Последний обусловлен резонансным или квазирезонансным обменом энергией между внешним и внутренними электронами квазимолекулы, образовавшейся в ходе симметричного либо асимметричного столкновения ридберговского атома с невозбужденным атомом собственного или буферного газа.

Нас будет интересовать область значений n , в которой резонансный механизм тушения является определяющим. Отметим, что разработанная ранее теория процессов переноса слабо-связанного электрона была сориентирована на объяснение экспериментальных данных по образованию ионной пары при столкновениях нейтральных атомов или молекул с ридберговскими атомами в селективно возбужденных состояниях с относительно невысокими значениями орбитального момента $l \ll n$. Ниже будет показано, что для процессов столкновительного разрушения циркулярных и околоциркулярных состояний эта теория, основанная на модифицированной квазиклассической модели Ландау–Зинера для расчета вероятностей неадиабатических переходов между ионным и ридберговскими ковалентными термами, оказывается, строго говоря, неприменимой. Она может быть использована лишь для оценки величин эффективных сечений. Это связано с тем, что при описании динамики неадиабатических переходов с участием таких состояний возникает ряд специфических особенностей, связанных со структурой их волновой функции.

Цель работы состоит в разработке теоретическо-

го подхода для надежного количественного описания процессов резонансного опустошения ридберговских nlm -состояний атомов с фиксированными значениями главного n , орбитального $l = n - 1$ и магнитного m ($0 \leq |m| \leq n - 1$) квантовых чисел. Полученные результаты будут использованы для проведения конкретных расчетов и анализа поведения сечений процессов столкновений атомов $\text{Li}(nlm)$ с атомами $\text{Ca}(4s^2)$ и $\text{Sr}(5s^2)$. Это позволит установить характер зависимостей сечений от квантовых чисел n, l, m и угла α между вектором относительной скорости атомов и нормалью к плоскости орбиты ридберговского электрона. В задачи работы входит также исследование влияния ориентационных эффектов в столкновениях атомов на эффективность разрушения циркулярных и околоциркулярных состояний. Все формулы записаны в системе атомных единиц $e = m = \hbar = 1$.

2. ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ ПОДХОД

2.1. Исходные формулы для вероятностей и сечений резонансных процессов

Рассмотрим движение ридберговского электрона в системе координат, связанной с центром масс квазимолекулы. Пусть \mathbf{r} — радиус-вектор электрона относительно щелочноземельного атома В, \mathbf{R} — вектор межъядерного расстояния и $\mathbf{r}' = \mathbf{r} - \mathbf{R}$ — радиус-вектор электрона относительно центра положительного иона A^+ (рис. 1). Тогда в рамках одно-электронного приближения гамильтониан электрона можно записать в виде

$$H = T_e + V_{eA^+}(r') + V_{eB}(r), \quad (1)$$

где T_e — оператор кинетической энергии, а $V_{eA^+}(r')$ и $V_{eB}(r)$ — сферически-симметричные потенциалы взаимодействия электрона соответственно с ионным остовом атома A^* и щелочноземельным атомом В,

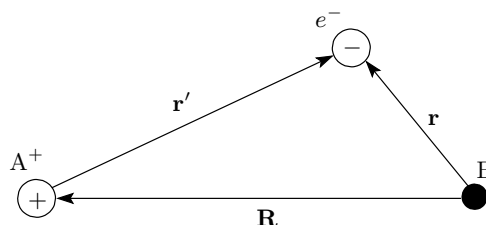


Рис. 1. Внешний электрон e^- ридберговского атома А в поле своего положительного ионного остова A^+ и возмущающей нейтральной частицы В

причем $V_{eA^+} \rightarrow -1/r'$ при $r' \rightarrow \infty$. При тепловых столкновениях нейтральных частиц для описания межъядерного движения можно воспользоваться классической прямолинейной траекторией $\mathbf{R}(t) = \boldsymbol{\rho} + \mathbf{v}t$ (где $\boldsymbol{\rho}$ — прицельный параметр, а \mathbf{v} — скорость относительного движения). В этом случае, в пренебрежении эффектами, связанными с преобразованием волновой функции возмущающей частицы вследствие ее движения [65, 66] и так называемыми неинерциальными эффектами [67–73], нестационарное уравнение Шредингера для волновой функции Ψ слабосвязанного электрона принимает вид

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi[\mathbf{r}, \mathbf{R}(t)] = \{H_A(\mathbf{r}') + V_{eB}(\mathbf{r})\} \Psi[\mathbf{r}, \mathbf{R}(t)]. \quad (2)$$

В этом уравнении $H_A(\mathbf{r}')$ — гамильтониан невозмущенного ридберговского атома А,

$$H_A = -\frac{\Delta_{\mathbf{r}'}}{2} + V_{eA^+}(r'). \quad (3)$$

В рамках рассматриваемого в данной работе механизма тушение исходного высоковозбужденного состояния $|i\rangle \equiv |n_i l_i m_i\rangle$ осуществляется путем перехода между исходным ридберговским ковалентным $U_i(R)$ и одним из ионных $U_\beta(R)$ термами квазимолекулы, образующейся в ходе столкновения, с возможностью последующего распада ионного состояния в одно из ковалентных $U_k(R)$, отличных от начального ($i \neq k$). Соответственно, решение уравнения (2) удобно представить в виде разложения по волновым функциям отрицательного иона B^- , $\Phi_\beta(\mathbf{r})$, и ридберговского атома A^* , $\psi_k(\mathbf{r}')$:

$$\begin{aligned} \Psi[\mathbf{r}, \mathbf{R}(t)] = & \sum_{\beta} a_{\beta}(t) \Phi_{\beta}(\mathbf{r}) \times \\ & \times \exp \left\{ -i \int_{-\infty}^t U_{\beta}[R(t')] dt' \right\} + \\ & + \sum_k b_k(t) \psi_k(\mathbf{r}') \exp \left\{ -i \int_{-\infty}^t U_k[R(t')] dt' \right\}. \quad (4) \end{aligned}$$

В данной работе в качестве возмущающих атомов В рассматриваются атомы кальция и стронция. Наряду с барием и радием, их отличительная особенность состоит в способности к образованию слабосвязанного аниона в состоянии с $\ell_f \equiv \ell_\beta = 1$. Волновая функция таких анионов в основном локализована на значительном расстоянии от атомного остова, что позволяет определить функцию

$$\Phi_{\beta}(\mathbf{r}) = \phi_{\nu_{\beta} \ell_{\beta}}(r) Y_{\ell_{\beta} m_{\beta}}(\mathbf{n}_{\mathbf{r}})$$

из решения одноэлектронного уравнения Шредингера для внешнего электрона в потенциале $V \equiv V_{eB}(r)$:

$$\left[-\frac{\Delta_{\mathbf{r}}}{2} + V(r) \right] \Phi_{\beta}(\mathbf{r}) = \varepsilon_{\beta} \Phi_{\beta}(\mathbf{r}), \quad (5)$$

где ε_{β} — энергия связанного состояния отрицательного иона. Индекс ν_{β} в выражении для Φ_{β} обозначает номер компоненты тонкой структуры ($j = 1/2, 3/2$). Таким образом, ионное состояние $|\beta\rangle$ квазимолекулы описывается тремя квантовыми числами $|\nu_{\beta} \ell_{\beta} m_{\beta}\rangle$. Волновые функции

$$\psi_k(\mathbf{r}') = \mathcal{R}_{n_k l_k}(r') Y_{l_k m_k}(\mathbf{n}_{\mathbf{r}'})$$

ридберговских ковалентных состояний удовлетворяют уравнению Шредингера

$$H_A \psi_k(\mathbf{r}') = E_k \psi_k(\mathbf{r}'), \quad (6)$$

где $E_k \equiv E_{n_k l_k} = -1/[2(n_k - \delta_{l_k})]^2$ — энергия связи внешнего электрона в ридберговском атоме, а δ_{l_k} — квантовый дефект $n_k l_k$ -уровня, связанный с отклонением потенциала $V_{eA^+}(r')$ ионного остова атома А от кулоновского. В данной работе преимущественно рассматриваются состояния с высоким значением орбитального квантового числа l_k , для которых квантовый дефект близок к нулю. Соответственно, их волновые функции описываются выражениями для водородоподобных состояний. В случае $\delta_{l_k} \neq 0$ расчет функции $\psi_k(\mathbf{r}')$ можно провести, например, с помощью метода, изложенного в работах [74].

Подстановка разложения (4) в уравнение (2) приводит к системе уравнений сильной связи (см., например, работы [34, 38]) для амплитуд $a_{\beta}(t)$ и $b_k(t)$, позволяющей определить вероятность опустошения начального ридберговского состояния. Прямое численное решение такой системы осложняется отсутствием надежных данных о поведении потенциала $V_{eB}(\mathbf{r})$ в области малых r , а также значительным числом ковалентных термов $|k\rangle$, участвующих в процессе. Для преодоления этих затруднений в работах [33–35] для определения вероятности процесса резонансного тушения ридберговских состояний с малыми значениями $l_i \sim 1$ была использована формула Ландау–Зинера, дополненная расчетом факторов выживания [37] отрицательного иона в поле положительного иона. В рамках такого подхода предполагается, что переходы между термами $U_i(R)$ и $U_{\beta}(R)$ происходят в ближайшей окрестности точек их пересечения R_c , определяемых из условия $U_i(R_c) = U_{\beta}(R_c)$. Однако, как будет показано в разд. 3.2, при расчете вероятностей резонансного тушения и образования ионной пары из начального циркулярного состояния ридберговского атома

нарушаются условия применимости формулы Ландау–Зинера, что приводит к значительным ошибкам при расчете сечений указанных процессов. В связи с этим в данной работе нами используется более общий подход, основанный на численном решении упрощенной системы уравнений для амплитуд вероятностей переходов.

В области межъядерных расстояний R , в которой происходят рассматриваемые переходы, выражения для ковалентного термина U_i начального состояния $|i\rangle \equiv |n_i l_i m_i\rangle$ и ионного термина U_f конечного состояния $|f\rangle \equiv |\nu_f \ell_f m_f\rangle$ квазимолекулы можно записать в виде

$$U_i = E_{n_i l_i} = -\frac{1}{2(n_i - \delta_{l_i})^2}, \quad U_f = \varepsilon_f - \frac{1}{R(t)}, \quad (7)$$

где $\varepsilon_f = -\gamma_f^2/2 < 0$. При этом точки квазипересечения термов имеют вид

$$R_c = \left[\frac{1}{2(n_i - \delta_{l_i})^2} + \varepsilon_f \right]^{-1}.$$

Пренебрежем прямыми переходами между ковалентными терминами U_k , которые, как отмечалось во Введении, для изучаемых здесь процессов играют существенную роль лишь при достаточно больших значениях n (подробнее см. [35]), а также ограничимся рассмотрением взаимодействия ионных термов квазимолекулы только с одним (начальным) ковалентным термом. Для учета многоканального характера задачи введем в систему уравнений член типа $\frac{i}{2}\Gamma_{\ell_f m_f}(t) a_f(t)$, описывающий возможность распада в ходе реакции $A(nl m) + B \rightarrow A^+ + B^- \rightarrow A(n' l' m') + B$ временно образующегося отрицательного иона B^- в кулоновском поле положительного ионного остова A^+ ридберговского атома (следует отметить, что подобного типа подход использовался ранее для иного рода задач в работах [75]). В результате таких упрощений приходим к системе уравнений

$$\begin{aligned} i \frac{da_{m_f}}{dt} &= b_i(t) V_{fi}^{(m_f)}(\mathbf{R}(t)) \times \\ &\times \exp \left\{ -i(E_{n_i l_i} - \varepsilon_f)t - i \int_{-\infty}^t \frac{dt'}{R(t')} \right\} - \\ &- \frac{i\Gamma_{\ell_f m_f}(t)}{2} a_{m_f}(t), \\ i \frac{db_i}{dt} &= \sum_{m_f} a_{m_f}(t) [V_{fi}^{(m_f)}(\mathbf{R}(t))]^* \times \\ &\times \exp \left\{ i(E_{n_i l_i} - \varepsilon_f)t + i \int_{-\infty}^t \frac{dt'}{R(t')} \right\}. \end{aligned} \quad (8)$$

Здесь

$$V_{fi}^{(m_f)}(\mathbf{R}) = \int \Phi_f^*(\mathbf{r}) V_{eB}(r) \psi_i(\mathbf{r} - \mathbf{R}) d\mathbf{r}$$

— матричный элемент перехода между начальным (ковалентным) и конечным (ионным) терминами, a_{m_f} и b_i — амплитуды вероятности заселения соответственно ионных и начального ковалентного состояний. Преимуществами использования системы (8) являются возможность корректного учета вкладов достаточно широких окрестностей точек квазипересечения термов, а также то, что величина интеграла для матричного элемента $V_{fi}^{(m_f)}(\mathbf{R})$ определяется главным образом областью $r \gg 1$, для которой хорошо известно асимптотическое поведение потенциала $V_{eB}(\mathbf{r})$. В данной работе рассматривается процесс резонансного тушения, происходящий через образование щелочноземельных анионов $\text{Ca}^-(4s^2 4p^2 P_{3/2})$ и $\text{Sr}^-(5s^2 5p^2 P_{1/2})$. При необходимости одновременного учета вкладов нескольких компонент тонкой структуры (например, $j_f = 1/2, 3/2$ для $\ell_f = 1$) система (8) легко обобщается путем введения нескольких наборов амплитуд $a_{m_f}^{j_f}$, соответствующих разным значениям энергии связи аниона $\varepsilon_f = \varepsilon_{j_f}$. В этом случае суммирование в первом члене второго уравнения системы (8) следует проводить по j_f и m_f .

Для ширины распада Γ_{1m_f} (напомним, что $\ell_f = 1$) аниона B^- в кулоновском поле положительного иона A^+ в конкретных расчетах нами были использованы выражения, полученные в работах [37, 76] (см. также соответствующие формулы для величин $\Gamma_{10}(R)$ и $\Gamma_{1,\pm 1}(R)$, приведенные в статьях [34, 35]).

Численное интегрирование уравнений проводится на интервалах $[-t_2; -t_1] \cup [t_1; t_2]$, границы которых определяются условиями

$$|V_{fi}(\mathbf{R}_c)| \ll \frac{1}{R_c^2} |R(t_{1,2}) - R_c|, \quad (9)$$

где $1/R_c^2$ — разность наклонов кривых потенциальной энергии квазимолекулы,

$$|F_f - F_i| = \left| -\frac{dU_f}{dR} + \frac{dU_i}{dR} \right|,$$

в точке $R = R_c$. Вне этих интервалов в уравнениях (8) полагаем $V_{fi} \equiv 0$, вследствие чего система допускает аналитическое решение.

Вероятности тушения и образования ионной пары вычисляются в рамках используемого здесь подхода по формулам

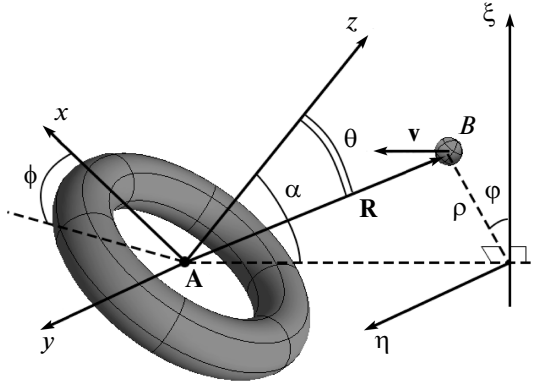


Рис. 2. Схематическое изображение картины столкновения нейтральной возмущающей частицы В и ридберговского атома А в циркулярном состоянии с тороидальной формой орбиты внешнего электрона: α — угол столкновения (т.е. угол между вектором \mathbf{v} относительной скорости атомов и нормалью z к плоскости орбиты электрона), φ — полярный угол в плоскости столкновения, ϕ — его проекция на плоскость орбиты электрона, θ — азимутальный угол, ρ — прицельный параметр

$$W^{(i)} = \sum_{m_f} |a_{m_f}(t \rightarrow +\infty)|^2, \quad (10)$$

$$W^{(q)} = 1 - |b_i(t \rightarrow +\infty)|^2 - W^{(i)} \quad (11)$$

при заданных начальных условиях:

$$b_i(t \rightarrow -\infty) = 1, \quad a_{m_f}(t \rightarrow -\infty) = 0. \quad (12)$$

Сечения процессов образования ионной пары и резонансного тушения могут быть получены в результате интегрирования выражений (10), (11) по прицельному параметру ρ и азимутальному углу φ :

$$\sigma^{(i,q)}(v) = \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^\infty W^{(i,q)}(\rho, \varphi, v) \rho d\rho. \quad (13)$$

При рассмотрении столкновений с участием ридберговского атома в циркулярном состоянии сечения будут также зависеть от величины угла столкновения α (рис. 2), т.е. угла между вектором относительной скорости \mathbf{v} сталкивающихся частиц и осью квантования z , которая перпендикулярна плоскости орбиты внешнего электрона [13, 15, 29]. В простейшем случае, когда этот угол равен нулю, полярный угол θ в угловой части волновой функции ридберговского атома выражается через прицельный пара-

метр, $\sin \theta = \rho/R$. В общем случае он также зависит от азимутального угла φ в плоскости столкновения:

$$\begin{aligned} \cos \theta &= \frac{\rho}{R} \sin \alpha \cos \varphi + vt \cos \alpha, \\ vt &= \pm \sqrt{1 - \frac{\rho^2}{R^2}}. \end{aligned} \quad (14)$$

Следует отметить, что для канала образования ионной пары имеется пороговая величина относительной скорости столкновения v_{min} , определяемая из условия $\mu v^2/2 > 1/2n_*^2 - \gamma^2/2$, где μ — приведенная масса атомов А* и В, $n_* = n - \delta_l$ — эффективное главное квантовое число, а $\gamma = \sqrt{2|\epsilon_f|}$ — параметр, определяемый величиной энергии связи аниона $|\epsilon_f|$. Процесс резонансного тушения не имеет порога по скорости, т.е. для него $v_{min} = 0$.

2.2. Матричный элемент перехода

В недавних работах [40, 41] был предложен подход для точного определения матричных элементов V_{fi} сферически-симметричного потенциала V . Полученные при этом формулы позволяют выразить V_{fi} через $3j$ -символы и радиальные интегралы $\mathcal{F}_{\ell_f l_i}^{(\infty)}(R)$, величина которых зависит от межъядерного расстояния R между центром аниона В и атомным остатком А⁺. Важная особенность указанного подхода заключается в возможности корректного описания эффектов дальнедействующего взаимодействия слабосвязанного электрона с возмущающей частицей. Как было показано в работах [34, 41, 42], это имеет принципиальное значение для количественного описания процессов образования ионной пары и резонансного тушения. В случае переходов из рассматриваемых в данной работе «ориентированных» ридберговских состояний с $l_i = n_i - 1$ и фиксированным значением магнитного квантового числа m_i при образовании аниона в p -состоянии ($\ell_f = 1$) в промежуточном канале реакции выражения для матричных элементов перехода принимают вид

$$\begin{aligned} V_{fi}^{(m_f)}(\mathbf{R}) &= (-1)^{-m_i+1} \sqrt{12\pi} \times \\ &\times \left[\begin{pmatrix} \ell_f & n_i - 2 & l_i \\ m_f & q & -m_i \end{pmatrix} \times \right. \\ &\times \sqrt{n_i - 1} \mathcal{F}_{\ell_f l_i}^{(n_i-2)}(R) Y_{n_i-2,q}(\theta, \phi) + \\ &+ \left. \begin{pmatrix} \ell_f & n_i & l_i \\ m_f & q & -m_i \end{pmatrix} \times \right. \\ &\times \left. \sqrt{n_i} \mathcal{F}_{\ell_f l_i}^{(n_i)}(R) Y_{n_i,q}(\theta, \phi) \right], \quad (15) \end{aligned}$$

где $q = m_i - m_f$. Радиальные интегралы в (15) вычисляются по формуле

$$\mathcal{F}_{\ell_f l_i}^{(\infty)}(R) = i^{l_i} \sqrt{\frac{2}{\pi}} \int_0^{\infty} k^2 dk g_{n_i l_i}(k) j_{\infty}(kR) \times \int_0^{\infty} r^2 dr \phi_{\nu_f \ell_f}^*(r) V(r) j_{\ell_f}(kr). \quad (16)$$

Здесь $j_{\nu}(x)$ — сферическая функция Бесселя, k — импульс внешнего электрона относительно ионного остова A^+ , $\phi_{\nu_f \ell_f}$ — радиальная часть волновой функции аниона $\Phi_f(\mathbf{r}) = \phi_{\nu_f \ell_f}(r) Y_{\ell_f m_f}(\mathbf{n}_r)$ в координатном представлении, а $g_{n_i l_i}(k)$ — радиальная часть волновой функции $G_i(\mathbf{k}) = g_{n_i l_i}(k) Y_{l_i m_i}(\mathbf{n}_k)$ ридберговского атома в импульсном представлении (см., например, работу [5]). Полярный угол ϕ в аргументе сферических гармоник $Y_{\ell m}(\theta, \phi)$ (угол поворота относительно оси z) находится из соотношения

$$\text{tg } \varphi = \cos \alpha \text{ tg } \phi. \quad (17)$$

Приведенные выражения получены в рамках подхода, аналогичного использованному в работе [77]. Для циркулярных ридберговских состояний орбитальное и магнитное квантовые числа принимают максимальные (по модулю) значения: $|m_i| = l_i = n_i - 1$ [16].

2.3. Детали вычислений

Для иллюстрации результатов разработанного подхода были проведены расчеты исследуемых процессов для атомов Li в ридберговских состояниях с $l_i = n_i - 1$ и различными значениями магнитного квантового числа, сталкивающихся с атомами Ca($4s^2$) и Sr($5s^2$). Эти атомы обладают очень малыми энергиями сродства к электрону: $|\varepsilon| = 20$ мэВ и $|\varepsilon| = 52$ мэВ для состояний соответственно $\text{Ca}^-(4s^2 4p^2 P_{3/2})$ и $\text{Sr}^-(5s^2 5p^2 P_{1/2})$ [78], вследствие чего эффекты резонансного тушения в столкновениях с этими элементами выражены наиболее сильно. В расчетах волновых функций аниона и матричных элементов V_{fi} использованы следующие значения поляризуемостей щелочноземельных элементов: $\tilde{\alpha} = 160.77$ ат.ед. для Ca [79] и $\tilde{\alpha} = 197.6$ ат.ед. для Sr [80]. Основное внимание уделялось рассмотрению ридберговских атомов в циркулярных состояниях ($l_i = |m_i| = n_i - 1$). В рамках развитого подхода сечения резонансного тушения этих состояний при фиксированной относительной скорости атомов не зависят от типа ридберговского атома, поскольку их квантовые дефекты практически равны нулю.

Однако введение ширины распада, а также одноэлектронное описание процессов подразумевают, что рассматриваемые квантовые числа n_i существенно отличаются от величины n в основном состоянии. Для лития это условие выполняется уже при $n_i = 5$. Также величины сечений оказываются не зависящими от знака m_i , поэтому в данной работе негласно подразумевается, что $m_i \geq 0$.

В целях исследования относительной устойчивости циркулярных состояний по отношению к столкновительному опустошению нами был проведен расчет сечений для ридберговских состояний с $l_i = 0$. Квантовый дефект атома лития в s -состоянии составляет $\delta_s = 0.40$.

Для щелочноземельных атомов на данный момент не построен модельный одноэлектронный потенциал $V_{eB}(r)$, который одинаково хорошо работал бы на больших и на малых расстояниях r от ядра. Однако, как показано в работах [35, 38], знание конкретного вида короткодействующей части потенциала $V_{eB}(r)$ не является обязательным для определения волновой функции аниона в области больших и промежуточных значений r при условии, что его поведение при больших r описано корректно и приводит к правильной величине энергии связи аниона. В расчетах нами использован следующий вид потенциала:

$$V_{eB}(r) = -\frac{\tilde{\alpha}}{2r^4} \left\{ 1 - \exp \left[-\left(\frac{r}{r_0} \right)^6 \right] \right\}. \quad (18)$$

Здесь $\tilde{\alpha}$ — дипольная поляризуемость щелочноземельного атома, а r_0 — параметр, выбранный таким образом, что рассчитанная из уравнения Шредингера энергия связи p -электрона в потенциальной яме $V_{eB}(r)$ соответствует экспериментальному значению энергии сродства атома В к электрону. Отметим, что резонансное опустошение ридберговских состояний сильно поляризуемыми атомами происходит при очень больших (до 1000 ат.ед.) расстояниях от ядра возмущающей частицы. Поэтому надежное решение задачи требует точного задания волновой функции слабосвязанного аниона в очень широком диапазоне r . В данной работе это достигается путем использования реализованного в работе [81] метода R -матрицы с разбиением по секторам и базиса из функций DVR (discrete variable representation).

Для упрощения анализа результатов большинство вычислений проводилось для угла столкновения $\alpha = 0$. Поскольку в реальных экспериментах больший интерес представляют сечения, усреднен-

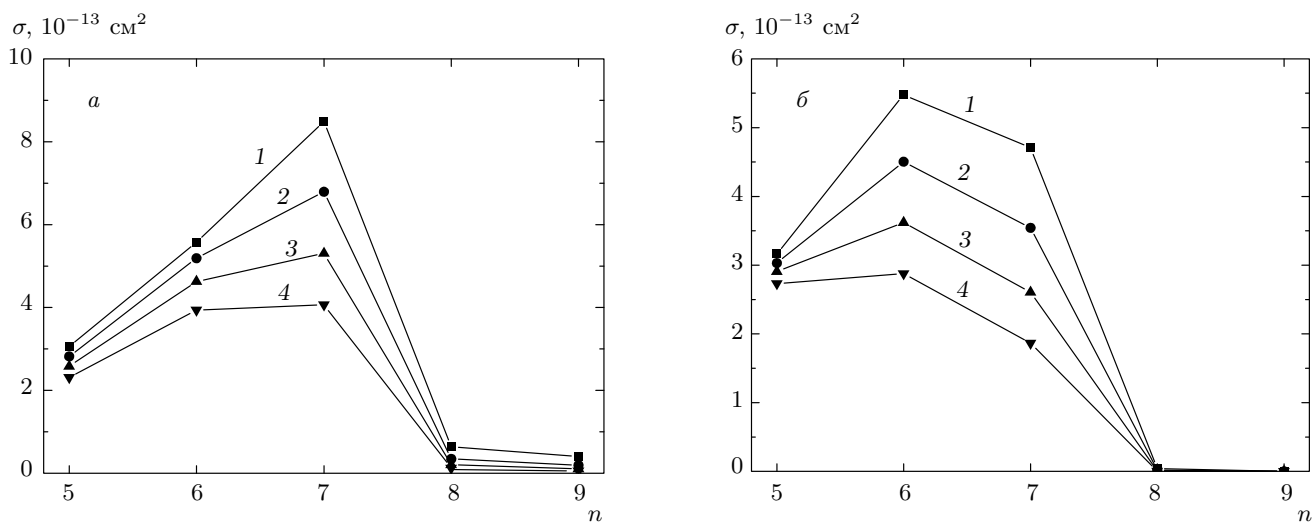


Рис. 3. Зависимости от n полных сечений разрушения циркулярных ридберговских состояний $\text{Li} (n, l = |m| = n - 1)$ в столкновениях с $\text{Ca}(4s^2)$ (*a*) и $\text{Sr}(5s^2)$ (*б*) в результате резонансного тушения и образования ионной пары для различных значений относительной скорости атомов: $v = 0.5 \cdot 10^{-3}$ ат. ед. (кривые 1), $1.0 \cdot 10^{-3}$ ат. ед. (2), $1.8 \cdot 10^{-3}$ ат. ед. (3), $3.0 \cdot 10^{-3}$ ат. ед. (4). Угол столкновения $\alpha = 0$

ные по этому углу, нами было проведено такое усреднение. С учетом симметрии задачи

$$\langle \sigma \rangle_\alpha = \frac{1}{4\pi} \int_0^{4\pi} \sigma(\alpha) d\Omega_\alpha = \int_0^{\pi/2} \sigma(\alpha) \sin \alpha d\alpha. \quad (19)$$

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

3.1. Поведение сечений опустошения циркулярных ридберговских состояний

В ряде предыдущих статей было показано, что сечения резонансного тушения [33–35] и образования ионной пары [36–42] имеют колоколообразную зависимость от главного квантового числа ридберговского атома. Положения и величины максимальных сечений сильно зависят от энергии связи отрицательного иона, орбитального квантового числа высоковозбужденного атома и относительной скорости сталкивающихся частиц. При этом, в отличие от тушения, процесс образования ионной пары имеет порог по скорости, зависящий от n . При относительных скоростях ниже пороговой происходит захват ионной пары на эллиптические орбиты с последующим распадом аниона и заселением ковалентных термов квазимолекулы. Таким образом, при $v < v_{min}$ сечения образования ионной пары дают дополнительный вклад в канал тушения.

Как следует из проведенных в данной работе расчетов, в случае циркулярных ридберговских состояний максимум колокола сдвигается в сторону главных квантовых чисел $n_i \sim 6-7$, меньших по сравнению с состояниями с $l_i \approx 0$. Это продемонстрировано на рис. 3, на котором изображены полные сечения $\sigma = \sigma^{(i)} + \sigma^{(q)}$ опустошения циркулярных состояний $\text{Li}(n, l = |m| = n - 1)$ в столкновениях с $\text{Ca}(4s^2)$ и $\text{Sr}(5s^2)$, складывающиеся из сечений резонансного тушения, $\sigma_i^{(q)}$, и образования ионной пары, $\sigma_i^{(i)}$. В расчетах использовались следующие значения относительной скорости столкновения атомов: $v = 0.5 \cdot 10^{-3}, 1.0 \cdot 10^{-3}, 1.8 \cdot 10^{-3}, 3.0 \cdot 10^{-3}$ ат. ед. Видно, что наклоны кривых в районе максимума довольно плавные, однако при увеличении n происходит резкое уменьшение сечения на порядок величины и более. Максимальное значение суммарного сечения $\sigma^{(i)} + \sigma^{(q)}$ уменьшается с ростом скорости столкновения, а его положение сдвигается в область меньших n (что более наглядно демонстрирует рис. 3*a*).

Такой характер зависимостей $\sigma(n)$ обусловлен, в первую очередь, поведением матричных элементов $V_{fi}^{(mf)}(\mathbf{R})$. Как было показано в наших предыдущих работах, квадрат модуля матричного элемента (при фиксированном \mathbf{R}) спадает с увеличением главного квантового числа, причем характер спада быстрее экспоненциального. При больших по модулю значениях матричного элемента происходит эффективное заселение ионных состояний, которые затем, распа-

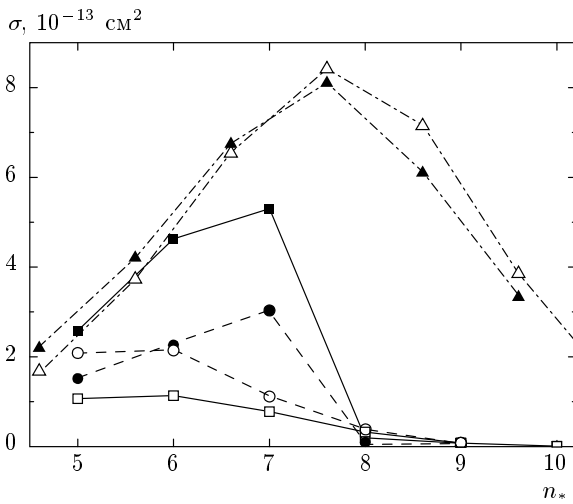


Рис. 4. Сравнение сечений резонансного тушения ридберговских состояний атомов $\text{Li}(nlm)$ атомами $\text{Ca}(4s^2)$, найденных из решения системы уравнений (8) (темные символы) и с использованием модифицированной теории Ландау–Зинера для вероятности перехода между ионным и ковалентным термами (светлые символы). Расчеты выполнены для циркулярных состояний с $l = |m| = n - 1$ (квадраты) и для состояний с $l = n - 1$ и $|m| = 0$ (кружки), а также для ns -состояний (треугольники). Скорость относительного движения атомов составляет $v = 1.8 \cdot 10^{-3}$ ат.ед.

даясь, вносят вклад в канал тушения. Таким образом, при малых n (в рассмотренных здесь случаях при $n \lesssim 7$) имеется широкая область прицельных параметров ρ , в которой $W^{(q)} \sim 1$, и сечение тушения (13) имеет значение, близкое к πR_c^2 . При больших n за счет резкого спада $|V_{fi}^{(mf)}(\mathbf{R})|$ вероятность тушения $W^{(q)} \ll 1$ во всем диапазоне изменения ρ , что приводит к уменьшению сечений. Матричные элементы для состояний с $l_i = n_i - 1$ в целом по модулю меньше, чем для состояний с $l_i = 0$, поэтому спад зависимостей $\sigma(n)$ начинается раньше. Увеличение скорости относительного движения приводит к уменьшению времени взаимодействия и, как следствие, к уменьшению вероятностей $W^{(q)}$ и $W^{(i)}$.

3.2. Сравнение с результатами расчетов в рамках модифицированной теории Ландау–Зинера

В случае ридберговских состояний с малыми орбитальными квантовыми числами вероятности $W^{(i)}$ и $W^{(q)}$ образования ионной пары и резонансного тушения могут быть вычислены по квазиклассичес-

кой формуле Ландау–Зинера, дополненной расчетами факторов выживания анионов в кулоновском поле положительного ионного остова высоковозбужденного атома [37]. Результаты данной работы показывают, что столкновения с участием ридберговских атомов в циркулярных и близких к ним состояниях выходят за пределы применимости такого подхода, поскольку в этом случае основной вклад в сечение дают прицельные параметры $\rho \approx R_c$. Нами было проведено сравнение результатов для сечений, полученных в рамках теории Ландау–Зинера и более точного метода, основанного на интегрировании системы уравнений (8) для амплитуд перехода. Как видно из рис. 4, сечения резонансного тушения $\text{Li}(ns) + \text{Ca}$, рассчитанные двумя указанными способами, совпадают с хорошей точностью. Напротив, при рассматриваемых в данной работе значениях $l = n - 1$ различие становится существенным. На графике приведены результаты расчетов для $m = 0$ и $m = n - 1$. В обоих случаях максимум сечения сместился в сторону больших n , а его величина возросла в 1.4 и 4.7 раз соответственно для $m = 0$ и $m = n - 1$. Спад сечения после прохождения максимального значения происходит более резко. Значительная разница в величинах сечений определяется прежде всего специфической пространственной структурой волновых функций циркулярных и близких к ним состояний. Для таких состояний нарушаются критерии применимости формулы Ландау–Зинера для вероятности перехода между начальным ковалентным и ионным термами, а именно, изолированность точек пересечения (выполнение условия $|V_{fi}(\mathbf{R})| \ll |dU_i/dR - dU_f/dR| |R - R_c|$, аналогичного (9), при незначительном удалении от точек $\mathbf{R} = \mathbf{R}_c$) и применимость линейного приближения для траектории $R \approx R_c + v_r(t - t_c)$ вблизи точек пересечения.

Для лучшего понимания этих различий ниже приводятся графики зависимости вероятностей тушения от прицельного параметра, вычисленных в рамках теории Ландау–Зинера, дополненной расчетом факторов выживания аниона, и с помощью решения временных уравнений для амплитуд перехода (рис. 5). Вероятности, рассчитанные с использованием теории Ландау–Зинера, резко возрастают при приближении ρ к своему предельному значению R_c (радиальная скорость $v_r = v\sqrt{1 - \rho^2/R^2} = 0$ при $\rho = R$). В случаях $l = 0$ (рис. 5а) и отчасти $l = n - 1$, $m = 0$ (рис. 5б) вклад больших прицельных параметров не является определяющим, так что сечения в целом согласуются с более точными расчетами в рамках представленного в данной работе подхода.

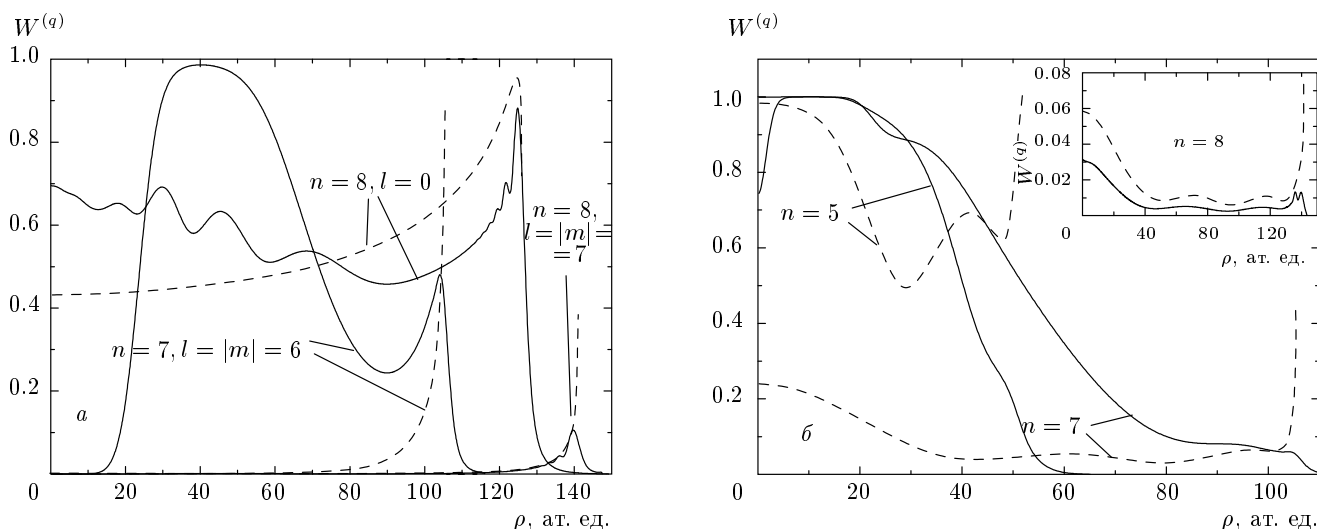


Рис. 5. Зависимости вероятностей $W^{(q)}$ резонансного тушения от прицельного параметра ρ в столкновениях $\text{Li}(nlm)+\text{Ca}$, вычисленные с помощью решения системы (8) (сплошные кривые) и при использовании формулы Ландау–Зинера, дополненной расчетом факторов выживания [33, 37] (штриховые кривые): $a - l = |m| = 0$ и $l = |m| = n - 1$; $b - l = n - 1, m = 0$. Угол столкновения $\alpha = 0, v = 1.8 \cdot 10^{-3}$ ат. ед.

Хотя уже для состояний с $l = n - 1, m = 0$ неучет в формуле для вероятности вклада межъядерных расстояний вне зоны квазипересечения ($R \approx R_c$) сказывается в области максимума сечений (кривые для $n = 7$ на рис. 5б), наиболее существенное различие возникает для циркулярных состояний, у которых вероятность Ландау–Зинера не равна нулю лишь в узкой окрестности точки $\rho = R_c$ (см. рис. 5а).

Графики построены для случая, когда относительная скорость сближения атомов ориентирована перпендикулярно плоскости торообразной орбиты ридберговского электрона и эффективное взаимодействие атомов происходит вблизи орбиты, т. е. в окрестности точек $\rho = R$. При $\rho \approx R_c$ вероятность тушения, полученная из решения уравнений (8), испытывает локальный максимум, что находится в согласии с результатами вычислений, выполненных в рамках метода работ [33, 37], использующего для расчета вероятности перехода между ионным и ковалентным термами формулу Ландау–Зинера. Вместе с тем при $n \leq 7$, вследствие увеличения характерных значений плотности вероятности нахождения ридберговского электрона и медленного спада модуля матричного элемента с уменьшением межъядерного расстояния, возникает второй максимум на зависимости $W^{(q)}(\rho)$ (случай $n = 7$ на рис. 5а), который занимает большую область прицельных параметров и с уменьшением n может «поглотить» максимум при $\rho \approx R_c$. Таким образом, при иссле-

довании процессов столкновительного тушения циркулярных и близких к ним ридберговских состояний применение подходов, основанных на использовании теории Ландау–Зинера, приводит к занижению значений вероятностей и сечений в области максимума зависимости $\sigma_i^{(q)}(n)$. При больших значениях $n \geq 8$, когда модуль матричного элемента настолько мал, что рост характерных значений квадрата модуля электронной волновой функции с уменьшением R не успевает компенсировать его спад, единственный пик вероятности $W^{(q)}$ приходится на область $\rho \approx R_c$. В этом случае, как показано на вставке к рис. 5б, вероятности, вычисленные по формуле Ландау–Зинера, дополненной учетом распада аниона в поле положительного иона, оказываются несколько завышенными.

Таким образом, особенности пространственной структуры волновых функций циркулярных и близких к ним состояний приводят к необходимости более точного описания динамики электронных переходов, происходящих в ходе столкновения. Хотя в области $n > 7$ сечения опустошения циркулярных состояний оказываются более чем на порядок меньше аналогичных величин для состояний ns , при $n = 6, 7$ результаты, полученные с использованием разработанного в данной статье подхода, указывают на высокую эффективность исследуемого в работе механизма столкновительного тушения. Данное обстоятельство может играть важную роль для активно

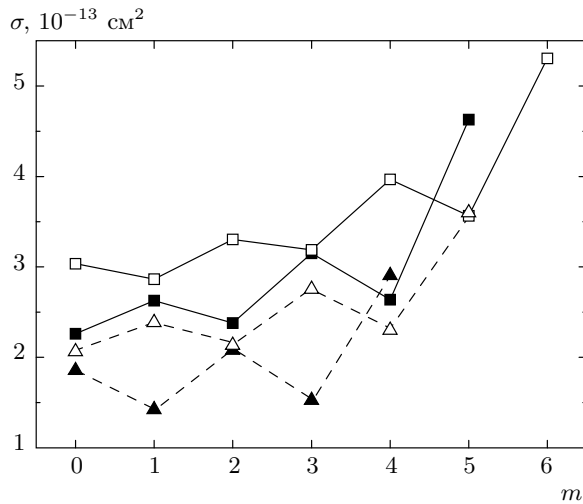


Рис. 6. Зависимости от магнитного квантового числа m сечений резонансного тушения Li ($n, l = n - 1, m$) в столкновениях с атомами Ca($4s^2$) (■ — $n = 6$, □ — $n = 7$) и Sr($5s^2$) (▲ — $n = 5$, △ — $n = 6$) при относительной скорости $v = 1.8 \cdot 10^{-3}$ ат. ед.

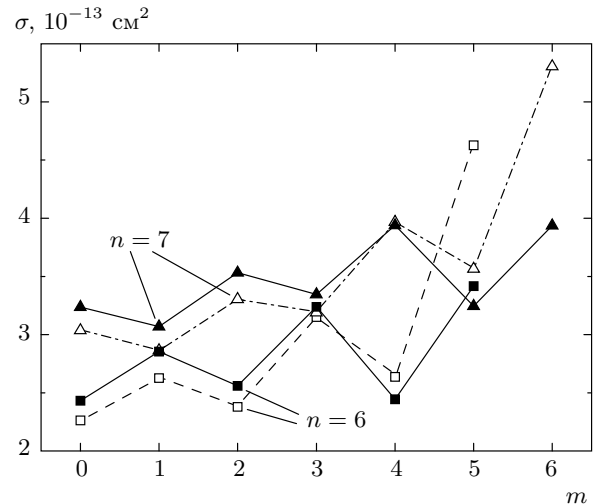


Рис. 7. Зависимости от магнитного квантового числа m сечений резонансного тушения Li ($n, l = n - 1, m$) в столкновениях с атомами Ca($4s^2$) при угле столкновения $\alpha = 0$ (светлые символы), а также усредненные по α (темные символы), вычисленные при $n = 6$ и $n = 7$; $v = 1.8 \cdot 10^{-3}$ ат. ед.

проводимых экспериментов в области квантовой информации, в которых используется традиционно высокая устойчивость циркулярных и эллиптических состояний ридберговских атомов по отношению к внешним воздействиям.

3.3. Ориентационные эффекты. Зависимости сечений от магнитного квантового числа

Значительное внимание в работах, посвященных исследованию традиционного механизма Ферми столкновительного тушения ридберговских состояний с высокими значениями орбитального квантового числа [13, 14], уделяется изучению ориентационных эффектов, связанных с зависимостью вероятностей и сечений процесса от величин угла столкновения α [13, 29] и магнитного квантового числа [58]. На рис. 6 представлены результаты расчетов сечений для альтернативного резонансного механизма тушения атомов Li($n, l = n - 1, m$) при взаимодействии с атомами Ca и Sr для различных значений $|m|$. Расчеты были выполнены с использованием формулы (15), полученной в данной работе. Рассматривается наиболее интересный случай, когда угол столкновения $\alpha = 0$, а величины n соответствуют максимальным значениям сечений $\sigma^{(q)}(n, l = n - 1)$, усредненных по m . Как уже отмечалось, сечения состояний с $|m| = n - 1$ оказываются максимальными из-за эффективного взаимодей-

ствия атомов в области их наибольшего сближения. При меньших (по модулю) магнитных квантовых числах сечения зависят от пространственной структуры волновых функций внешнего электрона в ридберговском атоме и отрицательном ионе вблизи точки пересечения термов. Они имеют слабоосциллирующий характер в зависимости от величины $|m|$, причем амплитуда осцилляций уменьшается с ростом n . Для параметров, указанных на рис. 6, отношение $\sigma_{|m|=n-1}/\sigma_{|m|=0}$ находится в пределах 1.6–2.0.

На рис. 7 представлены результаты усреднения приведенных выше сечений тушения в столкновениях Li($n, l = n - 1, m$) с кальцием по углу α (см. формулу (19)). Графики $\langle \sigma^{(q)} \rangle_\alpha(m)$ имеют менее ярко выраженные максимумы при $|m| = n - 1$, чем в случае $\alpha = 0$. Из сравнения рис. 6 и 7 видно, что при усреднении по углу зависимости сохраняют характерный вид осцилляций с нарастающей амплитудой.

Зависимость сечений резонансного тушения циркулярных состояний ($l = |m| = n - 1$) атомов Li от угла столкновения α для возмущающих атомов Ca($4s^2$) и Sr($5s^2$) приведена на рис. 8. Главные квантовые числа начальных состояний ($n = 7$ для столкновений с Ca и $n = 6$ для Sr) соответствуют максимальной величине $\sigma_{circ}(n)$ для данной скорости относительного движения v . Как видно из рисунка, сечения монотонно убывают с ростом α , так что их отношение при $\alpha = 0$ и $\alpha = \pi/2$ в рассматрива-

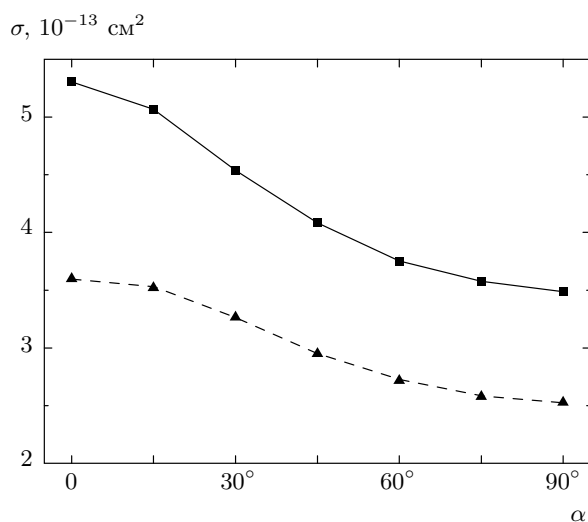


Рис. 8. Зависимости сечений резонансного тушения циркулярных состояний атомов Li ($n, l = |m| = n - 1$) атомами Ca($4s^2$) (сплошная кривая, $n = 7$) и Sr($5s^2$) (штриховая кривая, $n = 6$) от угла α между осью квантования z и вектором v относительной скорости сталкивающихся частиц ($v = 1.8 \cdot 10^{-3}$ ат. ед.)

емых условиях составляет 1.52 для Ca и 1.42 для Sr. Увеличение угла столкновения приводит к увеличению роли межъядерных расстояний $R > \rho$, и сечения, вычисленные в рамках подхода (8), приближаются к величинам, полученным с использованием квазиклассического подхода Ландау–Зинера с учетом факторов выживания. Расчеты показывают, что наибольшая стабильность циркулярных ридберговских состояний по отношению к рассматриваемому механизму опустошения достигается при $\alpha = \pi/2$, т. е. в условиях, когда скорость относительного движения оказывается параллельна плоскости орбиты ридберговского электрона (см. рис. 2).

На рис. 9 изображены величины сечений резонансного тушения ридберговских состояний в системе Li($n = 7, l = 6, m$) + Ca($4s^2$) при различных значениях угла столкновения α и магнитного квантового числа m . Циркулярные состояния имеют наиболее ярко выраженную угловую зависимость сечений тушения среди nlm -состояний с $l = n - 1$. Это является следствием сильной локализации волновой функции внешнего электрона в таких состояниях. Различие в пространственной структуре волновых функций близких к циркулярным ридберговских состояний с разными m приводит к существенно разным характерам угловых зависимостей сечений. В рассмотренном на рис. 9 случае с ростом угла функция $\sigma(m, \alpha)$ монотонно возрастает при $m = 0-3$, про-

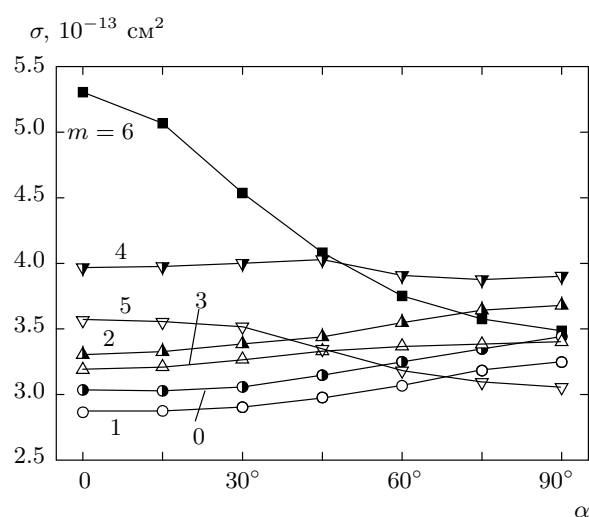


Рис. 9. Зависимости сечений резонансного тушения ридберговских состояний атомов Li ($n = 7, l = 6, m$) атомами Ca($4s^2$) от угла столкновения α ($v = 1.8 \cdot 10^{-3}$ ат. ед.). Значения m указаны около кривых

являет немонотонный характер при $m = 4$ и монотонно убывает при $m = 5, 6$.

Таким образом, нами были продемонстрированы зависимости сечений резонансного тушения ридберговских состояний с $l = n - 1$ и фиксированным значением $|m|$ от угла столкновения α и величины $|m|$. Показано, что при $\alpha = 0$ и $|m| = n - 1$, что соответствует циркулярному состоянию, сечения достигают максимального значения.

3.4. Усредненные сечения

В заключение приведем графики зависимости от n_* сечений тушения в реакции Li(nlm) + Ca($4s^2$), усредненных по углу столкновения (рис. 10). Вследствие слабой угловой зависимости для состояний с $l = n - 1, m = 0$ эти сечения отличаются от неусредненных не более чем на 7%. Отличие же для циркулярных состояний, характеризующихся сильно анизотропным пространственным распределением электронной плотности, достигает 35%. Таким образом, усреднение по углу столкновения приводит к некоторому росту устойчивости циркулярных ридберговских состояний по отношению к столкновительному опустошению. Вместе с тем следует отметить, что даже с учетом усреднения эффективность рассматриваемого в данной работе резонансного механизма тушения оказывается достаточно высокой, на что указывают характерные величины сечений.

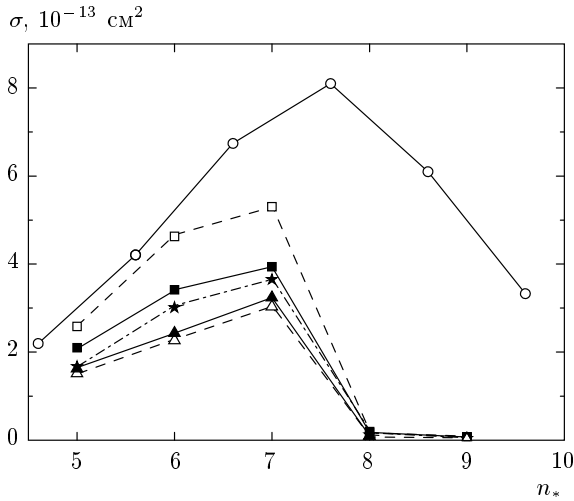


Рис. 10. Сравнение сечений резонансного тушения ридберговских состояний атомов $Li(nlm)$ атомами $Ca(4s^2)$ при $\alpha = 0$ (штриховые линии) и усредненных по углу столкновения α (сплошные линии). Расчеты выполнены для состояний с $l = n - 1$ ($m = n - 1$ — квадраты, $m = 0$ — треугольники) и $l = 0$ (кружки). Для значений орбитального углового момента $l = n - 1$ приведены также результаты для сечений, усредненных по m (штрихпунктир)

На рис. 10 также приведен график сечения тушения состояний с $l = n - 1$, усредненных по m . Очевидно, что, как и в случае ns -состояний, эти сечения не зависят от угла столкновения. Усредненные по углу сечения тушения циркулярных состояний превышают их в максимуме всего на 8%, что является следствием относительно слабой зависимости $\sigma(m, \alpha)$ от α при $|m| < l - 1$. Максимальные значения сечений состояний с $l = n - 1$ в рассмотренном случае в два раза меньше, чем соответствующая величина для ns -состояния.

Важно отметить, что в целом поведение сечений резонансного опустошения ридберговских состояний при изменении квантовых чисел nlm сохраняется при переходе от случая фиксированного угла столкновения α к случаю сечений, усредненных по углам. Таким образом, в конкретных расчетах для выяснения характера указанных зависимостей при различных типах сталкивающихся атомов, как правило, оказывается достаточным проведение расчета при заданном значении угла (например, при $\alpha = 0$). Это позволяет значительно сократить время, требуемое для выполнения расчетов.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе проведено исследование процессов взаимодействия ридберговских атомов в состояниях с заданными значениями главного, орбитального и магнитного квантовых чисел с атомами щелочноземельных элементов в основном состоянии, обладающими малыми энергиями сродства к электрону. Расчет и анализ процессов опустошения ридберговских состояний при взаимодействии таких атомов были проведены в области не слишком высоких значений эффективного главного квантового числа $n_* \lesssim 10$, где традиционный механизм Ферми, обусловленный рассеянием квазисвободного электрона на возмущающем атоме, оказывается неэффективным. Доминирующим при этом является резонансный механизм переходов [33], происходящих с образованием стабильного отрицательного иона и положительного иона в конечном канале реакции или пары нейтральных атомов через стадию временно образующегося аниона в ходе столкновения частиц (канал резонансного тушения). Основное внимание было сосредоточено на процессах резонансного тушения ридберговских атомов в циркулярных состояниях, которые в настоящее время представляют значительный интерес для задач квантовой информатики [31, 32].

Было показано, что в отличие от случая селективно возбужденных ридберговских состояний nl с малыми значениями орбитального момента $l \ll n$, надежное количественное описание этого процесса не может быть дано в рамках теоретического подхода, основанного на использовании метода Ландау–Зинера, дополненного учетом вероятности распада аниона в поле катиона (подробнее см. [33, 35]). Для преодоления этой трудности в данной работе был разработан подход, основанный на численном интегрировании связанных уравнений для амплитуд вероятностей переходов. Многоканальность задачи эффективно учитывалась за счет введения в систему дополнительного члена, описывающего распад отрицательного иона в кулоновском поле положительного иона. Расчет матричных элементов перехода с участием циркулярных ридберговских состояний был выполнен с использованием полученных недавно общих формул [40, 41], позволяющих точно учесть изменение волновой функции ридберговского атома на характерном размере аниона.

Конкретные численные расчеты сечений были выполнены для процесса резонансного тушения циркулярных и близких к ним ридберговских состояний атомов Li атомами $Ca(4s^2)$ и $Sr(5s^2)$. В результате проведенных в работе исследований было показано,

что сечения тушения имеют максимум при $n = 6-7$, величина которого возрастает с уменьшением относительной скорости столкновения v . При фиксированной скорости вдали от порогов максимальные сечения слабо отличаются для $l = 0-2$, но становятся в несколько раз меньше для околоциркулярных состояний $|n, l = n - 1, m\rangle$. При этом положение максимума n_{max} сдвигается в сторону меньших n .

Разработанный подход позволяет рассчитать сечения для фиксированного значения магнитного квантового числа ридберговского атома. Полученные зависимости сечения $\sigma_{n,n-1}^{(q)}$ от $|m|$ имеют ярко выраженные максимумы при $|m| = n - 1$, что соответствует циркулярному состоянию. Этот результат прямо противоположен результатам вычислений в рамках подхода работ [33, 37], что указывает на неприменимость последнего для описания процессов с участием циркулярных состояний.

В работе было продемонстрировано также, что для столкновений с атомами в состояниях nlm сечение процесса тушения зависит от угла α между осью квантования z и относительной скоростью сталкивающихся частиц \mathbf{v} , причем характер зависимости определяется величиной магнитного квантового числа. Для циркулярных состояний минимальные сечения $\sigma_{nl}^{(q)}(n)$ получаются при $\alpha = \pi/2$, а максимальные (при $\alpha = 0$) превышают их в 1.4–1.5 раз. Показано, что при усреднении по углу столкновения сохраняются как основные закономерности в зависимостях сечений от квантовых чисел ридберговского атома и типа возмущающего атома, так и характерные величины указанных сечений. Данное обстоятельство является важным с точки зрения анализа данных, получаемых в экспериментах, где указанный угол, как правило, не является фиксированным.

Ранние исследования [13], выполненные с использованием импульсного приближения в рамках модели квазисвободного электрона для случая тепловых столкновений атомов $\text{Na}^* + \text{He}$ при $n = 20$, показали, что циркулярные состояния стабильны по отношению к нерезонансному снятию возбуждения. В данной работе изучен альтернативный (резонансный) механизм девозбуждения через стадию образования отрицательного иона и его последующего распада в поле положительного иона, который доминирует при меньших n [33, 35]. Результаты проведенных расчетов указывают на увеличение устойчивости циркулярных состояний по отношению к резонансному тушению по сравнению с обычно исследуемыми ридберговскими nl -состояниями с теми же значениями n и малыми орбитальными квантовыми числами ($l \ll n$). Дополнительная стабильность

может быть достигнута, если использовать экспериментальные методики, обеспечивающие выполнение условия $\alpha = \pi/2$. Вместе с тем, установлено, что при $n = 5-7$ эффективность исследуемого механизма опустошения циркулярных состояний может оказаться достаточно высокой (сечения достигают $5 \cdot 10^{-13} \text{ см}^2$ для столкновений с атомами Ca), что необходимо учитывать при проведении экспериментов в условиях возбуждения состояний с не очень высокими n .

Область значений эффективного главного квантового числа n_* , в которой исследуемый здесь резонансный механизм столкновительного опустошения ридберговских nlm -состояний атомов является доминирующим, зависит от целого ряда факторов, в том числе от энергии сродства к электрону возмущающей нейтральной частицы, а также от величин орбитального l и магнитного m квантовых чисел и квантового дефекта δ_l . Как показано в недавней работе [35] на примере столкновений атомов $\text{Li}^* + \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$, в случае селективно возбужденных nl -состояний с $l \ll n$ вклад нерезонансного тушения (стандартный механизм, обусловленный рассеянием внешнего электрона на возмущающем атоме) оказывается существенно ниже, чем резонансных процессов тушения и образования ионной пары при $n_* \lesssim 10-11$. Более того, нерезонансный вклад пренебрежимо мал в окрестностях пиков резонансного тушения и образования ионных пар. В то же время сечения нерезонансного тушения сначала медленно растут с увеличением n_* , и для всех возмущающих атомов Ba, Sr и Ca первый максимум достигается вблизи $n_* = 13$, где вклады резонансного тушения и образования ионной пары становятся малыми. Таким образом, следует ожидать, что эти два механизма опустошения ридберговских состояний можно рассматривать независимо друг от друга, за исключением лишь непосредственной окрестности точки $n_* = 10.6$ для Li (ns), где эффекты, связанные с интерференцией вкладов резонансного и нерезонансного механизмов, должны быть приняты во внимание.

В случае циркулярных и околоциркулярных ридберговских состояний анализ полученных в данной работе результатов и их сравнение с соответствующей оценкой вклада нерезонансного механизма показывают, что резонансный механизм преимущественно определяет величины сечений тушения при $n_* \lesssim 9$. В непосредственной окрестности $n_* \approx 9$ невозможно, однако, достоверно рассчитать сечение тушения, рассматривая вклады от резонансного и нерезонансного механизмов переходов независимым

друг от друга образом. В этом случае точное описание динамики электронных переходов должно быть дано на основе численного решения уравнений сильной связи (см. формулы (6)–(9) в работе [35]). Этот вывод касается и теоретического описания процессов образования ионной пары. При дальнейшем увеличении n_* вклад нерезонансного механизма тушения постепенно становится определяющим и при достаточно высоких значениях n_* может быть с хорошей точностью рассчитан и без учета вклада резонансных процессов. Надежное самосогласованное решение этой задачи для столкновений ридберговских атомов в циркулярных состояниях с щелочноземельными атомами является самостоятельной сложной задачей и пока не проводилось.

В заключение отметим, что в целом установление механизмов и разработка эффективных методов описания физических процессов, происходящих в результате переноса слабосвязанного электрона при столкновениях нейтральных частиц с атомами в ридберговских состояниях, необходимы для решения ряда проблем атомно-молекулярной и оптической физики. В частности, это требуется для количественного объяснения результатов большой совокупности экспериментальных работ по образованию положительных ионов и атомарных или молекулярных анионов с малой энергией связи (см. работы [82, 83] и приведенные там ссылки), а также для разработки новых методов охлаждения полярных молекул посредством их трансформации в отрицательные ионы [84]. Проведенные в [34, 35, 40–42] и в данной работе исследования резонансных процессов, происходящих в результате переноса электрона в квазимолекулярной системе $A^+ + B^-$, могут при определенной модификации служить теоретической основой для изучения процессов образования «тяжелых» ридберговских систем большого радиуса, состоящих из положительного и слабосвязанного отрицательного ионов [85, 86].

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 14-22-00273).

ЛИТЕРАТУРА

1. T. F. Gallagher, *Rydberg Atoms*, Cambridge Univ. Press, Cambridge (1994).
2. V. S. Lebedev and I. L. Beigman, *Physics of Highly Excited Atoms and Ions*, Springer, Berlin (1998).
3. Б. М. Смирнов, УФН **131**, 577 (1980).
4. *Ридберговские состояния атомов и молекул*, под ред. Р. Стеббингса, Ф. Даннинга, Мир, Москва (1985).
5. I. L. Beigman and V. S. Lebedev, Phys. Rep. **250**, 95 (1995).
6. V. S. Lebedev, *Collision Processes Involving Highly Excited Atoms and Neutral Particles*, ed. by I. M. Khalatnikov, Vol. 21, Pt. 1, pp. 1–304, Cambridge Sci. Publ., Cambridge (2004).
7. Г. В. Голубков, Г. К. Иванов, *Ридберговские состояния атомов и молекул и элементарные процессы с их участием*, Книжный дом «Либроком», Москва (2009).
8. Л. М. Биберман, В. С. Воробьев, И. Т. Якубов, *Кинетика неравновесной низкотемпературной плазмы*, Наука, Москва (1982).
9. Z. Dačić Gaeta and C. R. Stroud, Jr., Phys. Rev. A **42**, 6308 (1990).
10. J.-C. Gay, D. Delande, and A. Bommier, Phys. Rev. A **39**, 6587 (1989).
11. M. Brune, P. Nussenzveig, F. Schmidt-Kaler et al., Phys. Rev. Lett. **72**, 3339 (1994).
12. M. P. de Boer, J. H. Hoogenraad, R. B. Vrijen et al., Phys. Rev. Lett. **71**, 3263 (1993).
13. E. de Prunelé, Phys. Rev. A **31**, 3593 (1985).
14. T. Yoshizawa and M. Matsuzawa, J. Phys. Soc. Jpn. **54**, 918 (1985).
15. S. B. Hansen, T. Ehrenreich, E. Horsdal-Pedersen et al., Phys. Rev. Lett. **71**, 1522 (1993).
16. R. G. Hulet and D. Kleppner, Phys. Rev. Lett. **51**, 1430 (1983).
17. C. H. Cheng, C. Y. Lee, and T. F. Gallagher, Phys. Rev. Lett. **73**, 3078 (1994).
18. R. Lutwak, J. Holley, P. P. Chang et al., Phys. Rev. A **56**, 1443 (1997).
19. J. M. Raimond, T. Meunier, P. Bertet et al., J. Phys. B **38**, S535 (2005).
20. L. Kristensen, T. Bové, B. D. DePaola et al., J. Phys. B **33**, 1103 (2000).
21. J. Preclíková, A. Waheed, D. Fregenal et al., Phys. Rev. A **85**, 043416 (2012).
22. S. I. Simonsen, S. A. Sørgård, M. Førre, and J. P. Hansen, Phys. Rev. A **86**, 043423 (2012).

23. B. Wyker, S. Ye, F. B. Dunning et al., *Phys. Rev. A* **84**, 043412 (2011).
24. D. A. Anderson, A. Schwarzkopf, R. E. Sapiro, and G. Raithel, *Phys. Rev. A* **88**, 031401(R) (2013).
25. L. Sælen, S. I. Simonsen, and J. P. Hansen, *Phys. Rev. A* **83**, 015401 (2011).
26. B. Hezel, M. Mayle, and P. Schmelcher, *Phys. Rev. A* **84**, 063402 (2011).
27. D. Janby, L. B. Madsen, and V. N. Ostrovsky, *Phys. Rev. A* **73**, 062708 (2006).
28. M. R. Flannery and E. Oks, *Phys. Rev. A* **73**, 013405 (2006).
29. M. F. V. Lundsgaard, Z. Chen, C. D. Lin, and N. Toshihima, *Phys. Rev. A* **51**, 1347 (1995).
30. J. Macek and S. Y. Ovchinnikov, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2357 (1992).
31. M. Saffman, T. G. Walker, and K. Mølmer, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2313 (2010).
32. T. Xia, X. L. Zhang, and M. Saffman, *Phys. Rev. A* **88**, 062337 (2013).
33. I. I. Fabrikant and V. S. Lebedev, *J. Phys. B* **33**, 1521 (2000).
34. А. А. Наритц, Е. С. Мирончук, В. С. Лебедев, *ЖЭТФ* **144**, 699 (2013).
35. А. А. Наритц, Е. С. Мирончук, and V. S. Lebedev, *J. Phys. B* **47**, 015202 (2014).
36. C. Desfrancois, *Phys. Rev. A* **51**, 3667 (1995).
37. I. I. Fabrikant, *J. Phys. B* **31**, 2921 (1998).
38. I. I. Fabrikant and M. I. Chibisov, *Phys. Rev. A* **61**, 022718 (2000).
39. E. Yu. Buslov and B. A. Zon, *Phys. Rev. A* **85**, 042709 (2012).
40. V. S. Lebedev, A. A. Narits, in: *Atomic Processes in Basic and Applied Physics*, ed. by V. Shevelko and H. Tawara, Springer Ser. on Atomic, Optical, and Plasma Physics, Vol. 68, Springer, Berlin (2012), Ch. 9, p. 211.
41. В. С. Лебедев, А. А. Наритц, *ЖЭТФ* **144**, 683 (2013).
42. V. S. Lebedev and A. A. Narits, *Chem. Phys. Lett.* **582**, 10 (2013).
43. E. Fermi, *Nuovo Cimento* **11**, 157 (1934).
44. A. Omont, *J. de Phys.* **38**, 1343 (1977).
45. J. Derouard and M. Lombardi, *J. Phys. B* **11**, 3875 (1978).
46. E. de Prunelé and J. Pascale, *J. Phys. B* **12**, 2511 (1979).
47. M. R. Flannery, *Ann. Phys. (N. Y.)* **61**, 465 (1970).
48. F. Gounand and L. Petitjean, *Phys. Rev. A* **30**, 61 (1984).
49. В. С. Лебедев, В. С. Марченко, *ЖЭТФ* **88**, 754 (1985).
50. В. С. Лебедев, В. С. Марченко, *ЖЭТФ* **91**, 428 (1986).
51. V. S. Lebedev and V. S. Marchenko, *J. Phys. B* **20**, 6041 (1987).
52. B. Kaulakys, *J. Phys. B* **18**, L167 (1985).
53. В. П. Кaulakys, *ЖЭТФ* **91**, 391 (1986).
54. V. S. Lebedev, *J. Phys. B* **25**, L131 (1992).
55. V. S. Lebedev and I. I. Fabrikant, *Phys. Rev. A* **54**, 2888 (1996).
56. V. S. Lebedev and I. I. Fabrikant, *J. Phys. B* **30**, 2649 (1997).
57. V. S. Lebedev, *J. Phys. B* **31**, 1579 (1998).
58. E. G. Layton and M. A. Morrison, *Phys. Rev. A* **63**, 052711 (2001).
59. V. S. Lebedev, *J. Phys. B* **24**, 1977 (1991).
60. R. K. Janev and A. A. Mihajlov, *Phys. Rev. A* **20**, 1890 (1979).
61. В. А. Иванов, В. С. Лебедев, В. С. Марченко, *ЖЭТФ* **94**, 86 (1988).
62. В. А. Иванов, В. С. Лебедев, В. С. Марченко, *Письма в ЖТФ* **14**, 1575 (1988).
63. R. K. Janev and A. A. Mihajlov, *Phys. Rev. A* **21**, 819 (1980).
64. V. S. Lebedev, *J. Phys. B* **24**, 1993 (1991).
65. J. B. Delos, *Rev. Mod. Phys.* **53**, 287 (1981).
66. Е. А. Соловьев, *УФН* **32**, 228 (1989).
67. В. А. Смирнов, *Опт. и спектр.* **37**, 407 (1974).
68. A. P. Hickman, *J. Phys. B* **14**, L419 (1981).
69. В. С. Лебедев, В. С. Марченко, С. И. Яковленко, *Изв. АН СССР, сер. Физ.* **45**, 2395 (1981).
70. В. П. Kaulakys, *Litov. Fiz. Sb.* **22**, 3 (1982).

71. В. С. Лебедев, В. С. Марченко, ЖЭТФ **84**, 1623 (1983).
72. В. С. Лебедев, В. С. Марченко, Хим. физ. **3**, 210 (1984).
73. F. Gounand and L. Petitjean, Phys. Rev. A **32**, 793 (1985).
74. M. J. Seaton, Rep. Prog. Phys. **46**, 167 (1983); Comp. Phys. Comm. **146**, 225, 250, 254 (2002).
75. А. З. Девдариани, В. Н. Островский, Ю. Н. Себякин, ЖЭТФ **71**, 909 (1975); **73**, 412 (1977); **76**, 529 (1979).
76. А. А. Радциг, Б. М. Смирнов, ЖЭТФ **60**, 521 (1971).
77. В. С. Лебедев, ЖЭТФ **103**, 50 (1993).
78. T. Andersen, Phys. Rep. **394**, 157 (2004).
79. S. Chattopadhyay, B. K. Mani, and D. Angom, Phys. Rev. A **89**, 022506 (2014).
80. J. Mitroy and J. Y. Zhang, Mol. Phys. **108**, 1999 (2010).
81. S. O. Danielache, S. Tomoya, A. Kondorsky et al., J. Chem. Phys. **140**, 044319 (2014).
82. R. N. Compton and N. I. Hammer, *Advances in Gas Phase Ion Chemistry*, Vol. 4, Elsevier Sci. Publ., Amsterdam (2001), p. 257.
83. L. Suess, Y. Liu, R. Parthasarathy, and F. B. Dunning, J. Chem. Phys. **122**, 124315 (2005).
84. M. Hamamda, P. Pillet, H. Lignier, and D. Comparat, New J. Phys. **17**, 045018 (2015).
85. M. Cannon, C. H. Wang, and F. B. Dunning, Chem. Phys. Lett. **479**, 30 (2009).
86. C. O. Reinhold, S. Yoshida, and F. B. Dunning, J. Chem. Phys. **134**, 174305 (2011).