

УДК 535.21

ВЗАИМОСВЯЗАННЫЕ ДВУХУРОВНЕВЫЕ СИСТЕМЫ
В РЕЗОНАНСНОМ ЭЛЕКТРОМАГНИТНОМ ПОЛЕ

Х. В. НЕРКАРАЯН

НИИ физики конденсированных сред ЕГУ

(Поступила в редакцию 30 сентября 1984 г.)

Рассматривается поведение системы двух одинаковых атомов с перекрывающимися волновыми функциями возбужденных электронных состояний в резонансном электромагнитном поле. Показано, что в отличие от случая изолированных атомов здесь нелинейные явления наступают при вдвое меньших интенсивностях.

В ряде случаев атомы расположены на таком расстоянии, что эффективно перекрываются лишь волновые функции возбужденных электронных состояний соседних атомов, а перекрытием волновых функций возбужденного и невозбужденного состояний, как и двух невозбужденных состояний, можно пренебречь. Такая ситуация и возможности ее реализации ранее обсуждались в работе [1] при исследовании конденсированного возбужденного состояния. Из-за указанного перекрытия энергия, необходимая для возбуждения атома, окруженного невозбужденными соседями, заметно отличается от энергии, необходимой для возбуждения атома, имеющего хотя бы одного возбужденного соседа. Если на такую систему падает электромагнитная волна, частота которой является резонансной для атома с невозбужденными соседями, то она не может одновременно возбудить два соседних атома. Оказывается, что в отличие от изолированных атомов в таких взаимосвязанных многоатомных системах оптические нелинейные процессы проявляются при более низких интенсивностях падающего излучения.

Простейший пример, когда возможна реализация такого явления, — система двух одинаковых атомов с перекрывающимися волновыми функциями возбужденных электронных состояний. Такую систему можно описывать с помощью следующего гамильтониана

$$\hat{H} = \hat{H}_0(r_1, r_2, R_1, R_2) - [(er_1 + er_2) \Xi_0 e^{-i\omega t} + \text{к. с.}], \quad (1)$$

где $\hat{H}_0$ — гамильтониан системы двух электронов с пространственными координатами r_1 и r_2 в поле двух ядер, расположенных в точках R_1 и R_2 , Ξ_0 — постоянный комплексный вектор, определяющий амплитуду напряженности электрического поля волны, e — заряд электрона. Для определенности полагаем, что спины электронов параллельны. Однако, как нетрудно убедиться, это обстоятельство существенно не сказывается на исследуемом явлении.

Решение уравнения Шредингера будем искать в виде

$$\Psi = a_{00}(t) \psi_{00} e^{-\frac{i}{\hbar} 2 E_0 t} + (a_{01}(t) \psi_{01} + a_{10}(t) \psi_{10}) e^{-\frac{i}{\hbar} (E_0 + E_1) t} + a_{11}(t) \psi_{11} e^{-\frac{i}{\hbar} 2 E_1 t}, \quad (2)$$

$$\psi_{ij} = c_{ij} [\varphi_i(r_1 - R_1) \varphi_j(r_2 - R_2) - \varphi_i(r_2 - R_1) \varphi_j(r_1 - R_2)], \quad i, j = 0, 1. \quad (3)$$

Здесь E_0 , E_1 и φ_0 , φ_1 — собственные значения энергии и волновые функции изолированного атома соответственно в основном и возбужденном состояниях.

Согласно предположению о перекрытии волновых функций имеем

$$\int \varphi_0^*(r - R_1) \varphi_0(r - R_2) dr = \int \varphi_0^*(r - R_1) \varphi_1(r - R_2) dr, \quad c_{00} = c_{01} = c_{10} = 2^{-1/2}, \quad (4)$$

$$\int \varphi_1^*(r - R_1) \varphi_1(r - R_2) dr = S, \quad S^2 \ll 1, \quad c_{11} = [2(1 - S^2)]^{-1/2}.$$

В рамках резонансного приближения система уравнений для коэффициентов a_{ij} принимает следующий вид:

$$\begin{aligned} i\dot{a}_{00}(t) &= F^* e^{-i\epsilon t} [a_{01}(t) + a_{10}(t)], \\ i\dot{a}_{01}(t) &= \eta a_{10}(t) + F e^{i\epsilon t} a_{00}(t) + \sqrt{2} c_{11} F^* e^{-i\epsilon t} a_{11}(t), \\ i\dot{a}_{10}(t) &= \eta a_{01}(t) + F e^{i\epsilon t} a_{00}(t) + \sqrt{2} c_{11} F^* e^{-i\epsilon t} a_{11}(t), \\ i\dot{a}_{11}(t) &= \delta a_{11}(t) + \sqrt{2} c_{11} F e^{i\epsilon t} [a_{01}(t) + a_{10}(t)], \end{aligned} \quad (5)$$

где

$$F = -\frac{1}{\hbar} d_{01} \Xi_0, \quad \epsilon = \frac{1}{\hbar} (E_1 - E_0) - \omega, \quad d_{01} = \int \varphi_0^*(r) [er] \varphi_1(r) dr, \quad (6)$$

$$\hbar \delta = \int \int \psi_{11} [\hat{H}_0 - 2E_1] \psi_{11} dr_1 dr_2, \quad \hbar \eta = \int \int \psi_{01} \hat{H}_0 \psi_{11} dr_1 dr_2.$$

Здесь d_{01} — дипольный момент перехода, $\hbar \delta$ характеризует отличие суммарной энергии двух атомов с возбужденными электронными состояниями от удвоенного значения энергии изолированного возбужденного атома, $\hbar \eta$ указывает на возможность резонансной передачи энергии от одного атома к другому (см., например, [2]). Отметим, что хотя эффект резонансной передачи энергии в данной задаче не играет принципиальной роли, однако для рассматриваемых нами межатомных расстояний им нельзя пренебречь.

Представим коэффициенты $a_{ij}(t)$ в виде

$$a_{00} = A_{00} e^{i(\beta - \epsilon)t}, \quad a_{01} = A_{01} e^{i\beta t}, \quad a_{10} = A_{10} e^{i\beta t}, \quad a_{11} = A_{11} e^{i(\beta + \epsilon)t}, \quad (7)$$

В предельном случае $|\delta| \gg |F|$, $|\epsilon|$, $|\eta|$ система (5) может иметь решения при следующих значениях β :

$$\beta_1 = -\delta - \varepsilon, \beta_{2,3} = \frac{\varepsilon - \eta}{2} \pm \sqrt{\frac{1}{4}(\varepsilon + \eta)^2 + 2|F|^2}, \quad (8)$$

причем $A_{10} = A_{01}$.

Полагая $\varepsilon + \eta > 0$ и учитывая, что $\Psi \rightarrow \psi_{00}$ при $|F| \rightarrow 0$, для поляризации системы получим

$$D = \iint \Psi^* [e r_1 + e r_2] \Psi dr_1 dr_2 = D_0 e^{-i\omega t} + D_0^* e^{i\omega t}, \quad (9)$$

$$D_0 = \frac{-d_{01}F}{\left[\frac{1}{4}(\varepsilon + \eta)^2 + 2|F|^2\right]^{1/2}} \left\{ 1 + \frac{\varepsilon + \eta}{\delta} \left(-1 + \sqrt{1 + \frac{8|F|^2}{(\varepsilon + \eta)^2}} \right) \right\}. \quad (10)$$

Сравним полученный результат с аналогичным результатом для системы двух изолированных атомов ($\delta = 0, \eta = 0$):

$$D_0^0 = \frac{-d_{01}F}{\left[\frac{1}{4}\varepsilon^2 + |F|^2\right]^{1/2}}. \quad (11)$$

В рассмотренном нами приближении второй член в фигурных скобках формулы (10) мал по величине и связанные с ним нелинейности не являются определяющими. Из формул (10) и (11) следует, что возможность резонансной передачи энергии от атома к атому приводит лишь к смещению резонансной частоты и не влияет на нелинейные свойства системы. Наиболее существенное отличие (10) от (11) обусловлено коэффициентом 2 в знаменателе формулы (10) при члене $|F|^2$. Поскольку эффекты нелинейности обусловлены именно этим членом, то можно заключить, что во взаимосвязанных двухатомных системах необходимые для проявления этих эффектов интенсивности вдвое меньше, чем в изолированных атомах.

Рассмотрим теперь случай быстрого включения взаимодействия, полагая, что в начальный момент времени $t = t_0$ $\Psi = \psi_{00}$. Тогда вероятность нахождения системы в момент времени t в состоянии ψ_{10} либо ψ_{01} определяется следующим выражением

$$n_1(t) = |a_{01}|^2 + |a_{10}|^2 = \frac{8|F|^2}{[(\varepsilon + \eta)^2 + 8|F|^2]} \sin \left[\frac{1}{4}(\varepsilon + \eta)^2 + 2|F|^2 \right]^{1/2} (t - t_0). \quad (12)$$

Что же касается вероятности нахождения системы в состоянии ψ_{11} , то она есть величина порядка $|F|^2/\delta^2$ и в рамках нашего приближения ею можно пренебречь.

Будем считать, что все времена релаксации одинаковы и равны τ . Тогда, усредняя значение n_1 и полагая, что при отсутствии сильного поля все $N/2$ пар атомов в единице объема находятся в состоянии ψ_{00} , для поглощенной мощности получим

$$\Delta W = \frac{N}{2\tau} \frac{\hbar\omega |F|^2}{\left(\frac{1}{2\tau}\right)^2 + \left(\frac{\varepsilon + \eta}{2}\right)^2 + 2|F|^2}. \quad (13)$$

Сравним полученный результат с формулой, которая определяет поглощенную мощность N изолированных атомов (см., например, [3]). Оказы-

вається, що і здесь основне отличие состоит в появленні коефіцієнта 2 в знаменателі формули (13) при члені $|F|^2$. Это означає, що в отличие от ізолюваних атомів в розглянутому нами випадку насичення настає при вдвоє менших інтенсивностях.

Як було вказано вище, из-за перекриття хвильових функцій возбуждених електронних станів ймовірність знаходження системи в стані ψ_{11} є мала величина. Тоді поглинання, пов'язане з переходом в стан ψ_{11} , можна описати з допомогою теорії возмущень, в рамках якої коефіцієнт поглинання не залежить від інтенсивності випромінювання. В розглянутому нами випадку коефіцієнт поглинання можна представити в вигляді суми двох складових. Перше з них обумовлено переходом з стану ψ_{00} в ψ_{01} або ψ_{10} , а друге — переходом з ψ_{01} або ψ_{10} в ψ_{11} . В режимі насичення, коли

$$\frac{\max\{|\varepsilon|, |\gamma|, 1/\tau\}}{\delta} \ll \frac{|F|^2}{\delta^2} \ll 1, \quad (14)$$

система рівнянь (5) може мати рішення при наступних значеннях β :

$$\beta_1 = -\delta - \frac{2|F|^2}{\delta}, \quad \beta_{2,3} \approx \pm \sqrt{2}|F| + \frac{|F|^2}{\delta}(1+S^2) \mp \frac{3}{2S^2} \frac{|F|^3}{\delta^2}. \quad (15)$$

Тоді для коефіцієнта поглинання отримаємо

$$\alpha = \frac{N\hbar\omega}{4\tau} \left[1 + \frac{3}{2} \frac{|F|^2}{\delta^2} \right] \frac{2\pi}{c|\Xi_0|^2} \text{ при } \alpha! \ll 1, \quad (16)$$

де l — довжина резонансної середовища. Якщо, залишаючись в межах применимости наближення (14), збільшити значення $|\Xi_0|$, то коефіцієнт поглинання (16) буде намагатися до деякого відмінного від нуля позитивного значення, що також є характерною особливістю досліджуваних систем.

Автор вдячний В. М. Арутюняну і А. Ж. Мурадян за обговорення результатів роботи.

ЛИТЕРАТУРА

1. Маныкин Э. А., Ожован М. И., Полуэктов П. П. ЖЭТФ, 84, 442 (1983).
2. Давыдов А. С. Квантовая механика. Физматгиз, М., 1963, с. 576.
3. Стейнфелд Дж., Хаустон П. В кн. «Лазерная и когерентная спектроскопия». Изд. Мир, М., 1982, с. 28.

ՓՈԽԱՊԱԿՑՎԱՍ ԵՐԿՄԱԿԱՐԴԱԿԱՆԻ ՀԱՄԱԿԱՐԳԵՐԸ ՌԵԶՈՆԱՆՍՈՅԻՆ
ԷԼԵԿՏՐՈՄԱԳՆԵՏԻՍԱԿԱՆ ԴԱՇՏՈՒՄ

Խ. Վ. ՆԵՐԿԱՐԱՐՅԱՆ

Դիտարկվում է երկու միանման ատոմների վարքը ռեզոնանսային էլեկտրամագնիսական դաշտում, երբ ատոմների զրգուկած վիճակի էլեկտրոնային ալիքային ֆունկցիաները նկատելիորեն ծածկում են միմյանց: Ցույց է տրված, որ ի տարբերություն առանձնացված ատոմների այսպիսի օպտիկական ոչ գծային երևույթները երևան են գալիս ընկնող ճառագայթի ազդի փոքր լինելու պայմաններում:

INTERCONNECTED TWO-LEVEL SYSTEMS IN RESONANCE ELECTROMAGNETIC FIELD

Ch. V. NERKARARYAN

The behaviour of a system of two similar atoms with overlapping wave functions of excited electron states in resonance electromagnetic field is considered. It is shown that unlike the case of isolated atoms, the nonlinear effects show here at half as less intensities.