

B25

ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ СИБИРСКОГО ОТДЕЛЕНИЯ АН СССР

препринт

Ю.А.Вдовин, В.М.Галицкий

**элементарные электромагнитные возбуждения
в системе резонансных молекул**



НОВОСИБИРСК 1965

v

Элементарные электромагнитные возбуждения в системе
резонансных молекул

Ю.А.Вдовин, В.М.Галицкий

I. Введение

В настоящей работе рассматривается взаимодействие электромагнитного поля с совокупностью одинаковых резонансных молекул. Эта задача представляет значительный интерес в связи с ведущимися в настоящее время широкими исследованиями резонансных процессов при взаимодействии фотонов со средой. Предполагается, что резонанс является достаточно узким, так что для взаимодействия в данной области частот существенны лишь два молекулярных уровня. Разность энергий этих уровней (частота перехода ω_0) считается одинаковой у всех молекул. Мы исходим из предположения о хаотическом распределении молекул в пространстве, что справедливо в случае газовой среды и примесей в твердом теле. Мы не будем учитывать уширения линий, обусловленных движением молекул, штарк-эффектом и т.д.

В работе исследуются слабо-возбужденные состояния системы, так что взаимодействием квантов между собой можно пренебречь. В случае малой плотности среды эти возбуждения разделяются на индивидуальные возбуждения молекул и фотоны. Затухание первых возбуждений определяется излучением изолированных молекул, а вторых — процессами резонансного рассеяния квантов на молекулах [1]. При увеличении плотности среды такое разделение теряет смысл. Это видно, например, из того, что длина свободного пробега кванта становится меньше его длины волны. Однако еще до этого оказывается необходимым учитывать когерентное взаимодействие фотонов со средой, соответствующее наличию диэлектрической проницаемости. В этом случае не существует отдельных молекулярных возбуждений и фотонов. Вместо них появляются кванты электромагнитного поля среды с резонансной диэлектрической проницаемостью. В работе также найдено затухание этих состояний.

Исследование колебания плотности фотонов в такой резонансной системе было проведено в работе [2]. Несколько иной подход развивался в работах [3,4]. Однако в этих работах не рассматривались релаксационные процессы и не проводилось исследования структуры возбужденных состояний. В работе [5] влияние резонансности учитыва-

лось в рамках диэлектрической проницаемости среды.

П. Элементарные возбуждения без учета затухания

При рассмотрении поведения квантов в среде полезно ввести понятие о "квантах среды" учитывающее диэлектрическую проницаемость. Без учета затухания эти кванты могут быть введены каноническим преобразованием.

Гамильтониан H системы N молекул и поля излучения, заключенных в объеме V , имеет вид [2].

$$H = \frac{\omega_0}{2} \sum_j \sigma_z^j + \sum_{\vec{k}\lambda} (c_{\vec{k}\lambda} b_{\vec{k}\lambda}^+ + c_{\vec{k}\lambda}^+ b_{\vec{k}\lambda}) + \sum_{\vec{k}\lambda} \omega_k c_{\vec{k}\lambda}^+ c_{\vec{k}\lambda} \quad (1)$$

$$b_{\vec{k}\lambda}^+ = \sum_j \sigma_+^j \sqrt{\frac{2\pi}{\omega_k V}} (\vec{M}^j \vec{l}_\lambda) e^{i\vec{k}\vec{x}_j} = \sum_j \sigma_+^j Q_{\vec{k}\lambda}^{j*} e^{i\vec{k}\vec{x}_j}$$

$$b_{\vec{k}\lambda} = \sum_j \sigma_-^j \sqrt{\frac{2\pi}{\omega_k V}} (\vec{M}^{j*} \vec{l}_\lambda) e^{-i\vec{k}\vec{x}_j} = \sum_j \sigma_-^j Q_{\vec{k}\lambda}^j e^{-i\vec{k}\vec{x}_j} \quad (2)$$

$$\sigma_z^j = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}_j; \quad \sigma_+^j = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}_j; \quad \sigma_-^j = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}_j$$

Мы воспользовались системой единиц, в которой $\hbar=1$, \vec{x}_j - координата центра тяжести j -ой молекулы, ω_0 - разность энергий верхнего и нижнего уровней молекулы, $c_{\vec{k}\lambda}$ и $c_{\vec{k}\lambda}^+$ - операторы соответственного поглощения и излучения фотона с импульсом \vec{k} и поляризацией \vec{l}_λ ($\lambda=1,2$), $\omega_k^2 = c^2 k^2$. \vec{M}^j - матричный элемент перехода j -ой изолированной молекулы с нижнего уровня на верхний с одновременным поглощением фотона. Матричный элемент \vec{M}^j связан с вероятностью W спонтанного дипольного излучения фотона в единицу

времени изолированной молекулой соотношением

$$W = \frac{4}{3} \frac{\omega_0}{c^3} |\vec{M}^j|^2 = \frac{2}{3} |Q_k|^2 \frac{\omega_0^2 V}{\pi c^3} \quad (3)$$

Как и в работе [2] мы опустили в гамильтониане слагаемые, пропорциональные квадрату электромагнитного потенциала и слагаемые вида

$$\sum_{\vec{k}\lambda} (c_{\vec{k}\lambda} b_{-\vec{k}\lambda} + c_{\vec{k}\lambda}^+ b_{-\vec{k}\lambda}^+)$$

описывающие эффекты с несохранением числа частиц (число возбужденных молекул + число фотонов) в отдельном акте взаимодействия молекулы с полем излучения. Можно показать, что вносимая этими членами гамильтониана поправка порядка

$$(\omega_0 \tau)^{-2} \sim \rho \lambda^3 \frac{W}{\omega_0} \ll 1 \quad (4)$$

где $\rho = \frac{N}{V}$ плотность молекул. Члены порядка $1/\omega_0 \tau$ от основных мы в дальнейшем учитывать не будем.

Операторы $b_{\vec{k}\lambda}$, $b_{\vec{k}\lambda}^+$ удовлетворяют следующим коммутационным соотношениям

$$[b_{\vec{k}\lambda}, b_{\vec{k}'\lambda'}^+] = - \sum_j \sigma_z^j Q_{\vec{k}\lambda}^j Q_{\vec{k}'\lambda'}^{j*} e^{i(\vec{k}' - \vec{k})\vec{x}_j} \quad (5)$$

$$[b_{\vec{k}\lambda}, b_{\vec{k}'\lambda'}] = 0$$

$$[b_{\vec{k}\lambda}^+, b_{\vec{k}'\lambda'}^+] = 0 \quad (5')$$

Если почти все молекулы находятся на нижнем энергетическом уровне, то мы можем заменить справа в сумме $\sigma_z^j \rightarrow -1$, так что коммутатор операторов $b_{\vec{k}\lambda}, b_{\vec{k}'\lambda}^+$ будет числом. В силу фазовых соотношений это число максимально при $\vec{k}, \lambda' = \vec{k}, \lambda$. Отличие коммутатора от нуля при $\vec{k}, \lambda' \neq \vec{k}, \lambda$ связано с процессами рассеяния квантов и будет учтено дальше.

В этом приближении операторы $b_{\vec{k}\lambda}, b_{\vec{k}\lambda}^+$ можно считать бозе-операторами с коммутационными соотношениями (см. [2])⁺

$$[b_{\vec{k}\lambda}, b_{\vec{k}'\lambda'}^+] = \frac{1}{4\tau^2} \delta_{\vec{k}, \vec{k}'} \delta_{\lambda, \lambda'} \quad (6)$$

где

$$\frac{1}{4\tau^2} = \frac{|Q_k|^2 \cdot N}{3} = \frac{2J |\vec{M}^j|^2 N}{3V\omega_0} = \frac{J}{2} \rho \chi^3 W \omega_0 \quad (7)$$

(1/3 появилась из-за усреднения по направлениям вектора \vec{M}^j). В том же приближении оператор $\sum_{\vec{k}\lambda} b_{\vec{k}\lambda}^+ b_{\vec{k}\lambda}$ пропорционален оператору числа молекул на верхнем энергетическом уровне

$$\sum_{\vec{k}\lambda} b_{\vec{k}\lambda}^+ b_{\vec{k}\lambda} = \frac{1}{4\tau^2} \sum_j \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}_j$$

Таким образом, гамильтониан (I) переписется в виде

$$H = -\frac{\omega_0}{2} N + 4\tau^2 \omega_0 \sum_{\vec{k}\lambda} b_{\vec{k}\lambda}^+ b_{\vec{k}\lambda} + \sum_{\vec{k}\lambda} (c_{\vec{k}\lambda} b_{\vec{k}\lambda}^+ + c_{\vec{k}\lambda}^+ b_{\vec{k}\lambda}) + \sum_{\vec{k}\lambda} \omega_k c_{\vec{k}\lambda}^+ c_{\vec{k}\lambda} \quad (8)$$

с коммутационными соотношениями (5), (6).

Этот гамильтониан легко диагонализуется с помощью канонического преобразования. Введем вместо операторов $b_{\vec{k}\lambda}, c_{\vec{k}\lambda}$ новые бо-

+ Похожая ситуация имеет место при исследовании слабо-возбужденных состояний - спиновых волн в ферромагнетиках (см. напр. [6]).

зооператоры $\alpha_{\vec{k}\lambda}^{(1)}, \alpha_{\vec{k}\lambda}^{(2)}$

$$\alpha_{\vec{k}\lambda}^{(1)} = U_k^{(1)} b_{\vec{k}\lambda} + V_k^{(1)} c_{\vec{k}\lambda} \quad (9)$$

$$\alpha_{\vec{k}\lambda}^{(2)} = U_k^{(2)} b_{\vec{k}\lambda} + V_k^{(2)} c_{\vec{k}\lambda}$$

Для операторов $\alpha_{\vec{k}\lambda}^{(1)}, \alpha_{\vec{k}\lambda}^{(2)}$ требуем выполнения коммутационных соотношений

$$[\alpha_{\vec{k}\lambda}^{(r_1)}, \alpha_{\vec{k}\lambda}^{(r_2)+}] = \delta_{r_1, r_2} \quad r_1, r_2 = 1, 2 \quad (10)$$

Остальные коммутаторы также равны нулю. Из этих соотношений следует

$$\frac{1}{4\tau^2} U_k^{(r_1)} U_k^{(r_2)*} + V_k^{(r_1)} V_k^{(r_2)*} = \delta_{r_1, r_2} \quad (11)$$

Соответствующим выбором функций $U_k^{(r)}, V_k^{(r)}$ множители при операторах $\alpha_{\vec{k}\lambda}^{(1)+} \alpha_{\vec{k}\lambda}^{(2)}, \alpha_{\vec{k}\lambda}^{(2)+} \alpha_{\vec{k}\lambda}^{(1)}$ могут быть обращены в нуль.

Получаем

$$H = -\frac{\omega_0}{2} N + \sum_{\vec{k}\lambda} \omega_+ \alpha_{\vec{k}\lambda}^{(1)+} \alpha_{\vec{k}\lambda}^{(1)} + \sum_{\vec{k}\lambda} \omega_- \alpha_{\vec{k}\lambda}^{(2)+} \alpha_{\vec{k}\lambda}^{(2)} \quad (12)$$

где

$$\omega_+ = \omega_0 + \frac{1}{2} \Delta + \frac{1}{2} \Omega, \quad \Delta = \omega_k - \omega_0 \quad (13)$$

$$\omega_- = \omega_0 + \frac{1}{2} \Delta - \frac{1}{2} \Omega, \quad \Omega = \sqrt{\Delta^2 + \frac{1}{\tau^2}}$$

Причем

$$\begin{aligned}
 U_k^{(1)} &= \sqrt{2\tau^2(1 - \frac{\Delta}{\Omega})} ; \quad v_k^{(1)} = \sqrt{\frac{1}{2}(1 + \frac{\Delta}{\Omega})} ; \\
 U_k^{(2)} &= \sqrt{2\tau^2(1 + \frac{\Delta}{\Omega})} ; \quad v_k^{(2)} = -\sqrt{\frac{1}{2}(1 - \frac{\Delta}{\Omega})} ;
 \end{aligned}
 \tag{I4}$$

Соотношения (9) - (I4) и определяют слабовозбужденные состояния в системе резонансных молекул. Основное состояние системы $|0\rangle$ характеризуется тем, что все молекулы находятся в нижнем энергетическом состоянии и фотонов нет. Заметим, что это состояние является также точным основным состоянием гамильтониана (I). Энергия этого состояния равна $-\frac{1}{2}\omega_0 N$. Состояние $\propto c_{\vec{k}\lambda}^{(1,2)+} |0\rangle$ характеризуется наличием в системе одного элементарного возбуждения с энергией $\omega_{+,-}$. Эти возбуждения представляют собой кванты электромагнитного поля в среде, состоящей из резонансных молекул. Частоты ω_+ и ω_- есть результат решения дисперсионного уравнения $\omega^2 \epsilon = \omega_k^2$ в этом случае. Вдали от резонанса, при $\omega_k \gg \omega_0$ энергия ω_+ переходит в энергию свободного фотона ω_k , а энергия ω_- в энергию изолированной возбужденной молекулы ω_0 . При $\omega_k \ll \omega_0$, наоборот, ω_+ переходит в ω_0 , а ω_- в ω_k .

Как мы увидим в дальнейшем, понятие квантов в среде будет полезным лишь в случае достаточно большой плотности. В случае малой плотности целесообразнее пользоваться понятием кванта в пустоте (состояние $c_{\vec{k}\lambda}^+ |0\rangle$).

III. Затухание возбуждений. Функция распространения фотона

Мы рассматриваем задачу о поведении в среде резонансных молекул одного кванта. Фактически это решение будет справедливо также в случае большого числа квантов, если, однако, их плотность достаточно мала для того, чтобы пренебречь их взаимодействием друг с другом.

Мы будем считать, что в начальном состоянии в среде находится один фотон с импульсом \vec{k}_0 , поляризацией λ_0 , т.е. состояние описывается волновой функцией $c_{\vec{k}_0, \lambda_0}^+ |0\rangle$, или один квант среды, т.е. состояние $\propto c_{\vec{k}_0, \lambda_0}^{(1,2)+} |0\rangle$. Гамильтониан (I) сохраняет число воз-

буждений, поэтому состояние будет оставаться одночастичным в любой момент времени. Волновая функция произвольного одночастичного состояния может быть написана в виде:

$$\Psi(t) = \sum_{\vec{k}\lambda} f_\lambda(\vec{k}, t) c_{\vec{k}\lambda}^+ |0\rangle e^{iN\frac{\omega_0}{2}t} + \sum_j \varphi_j(t) \epsilon_j^+ |0\rangle e^{iN\frac{\omega_0}{2}t} \tag{I5}$$

Вероятность обнаружения в системе фотона $\vec{k}\lambda$ дается величиной

$$|f_\lambda(\vec{k}, t)|^2$$

Из уравнения Шредингера

$$i\dot{\Psi} = H\Psi$$

получаем следующие уравнения для амплитуд $f_\lambda(\vec{k}, t)$, $\varphi_j(t)$

$$\begin{aligned}
 i\dot{f}_\lambda(\vec{k}, t) &= \omega_k f_\lambda(\vec{k}, t) + \sum_j Q_{\vec{k}\lambda}^j e^{-i\vec{k}\vec{x}_j} \varphi_j(t) \\
 i\dot{\varphi}_j(t) &= \omega_0 \varphi_j(t) + \sum_{\vec{k}'\lambda'} Q_{\vec{k}'\lambda'}^{j*} e^{i\vec{k}'\vec{x}_j} f_{\lambda'}(\vec{k}', t)
 \end{aligned}
 \tag{I6}$$

Нам необходимо найти решение этих уравнений с начальными условиями

$$f_\lambda(\vec{k}, 0) = \delta_{\vec{k}, \vec{k}_0} \delta_{\lambda, \lambda_0} ; \quad \varphi_j(0) = 0 \tag{I7}$$

От зависящих от времени амплитуд $f_\lambda(\vec{k}, t)$, $\varphi_j(t)$ удобно перейти к их лапласовским образам

$$\begin{aligned}
 \int_0^\infty e^{-pt} f_\lambda(\vec{k}, t) dt &= f_\lambda(\vec{k}, ip) \equiv f_\lambda(\vec{k}, \omega) \\
 \int_0^\infty e^{-pt} \varphi_j(t) dt &= \varphi_j(ip) \equiv \varphi_j(\omega)
 \end{aligned}
 \tag{I8}$$

где мы обозначили $i\rho = \omega$.

При этом уравнения (16) с учетом начальных условий (17) переписутся в виде

$$\begin{aligned} (\omega - \omega_k) f_\lambda(\vec{k}, \omega) &= i \delta_{\vec{k}, \vec{k}_0} \delta_{\lambda, \lambda_0} + \sum_j Q_{\vec{k}\lambda}^j e^{-i\vec{k}\vec{x}_j} \varphi_j(\omega) \\ (\omega - \omega_0) \varphi_j(\omega) &= \sum_{\vec{k}'\lambda'} Q_{\vec{k}'\lambda'}^{j*} e^{i\vec{k}'\vec{x}_j} f_{\lambda'}(\vec{k}', \omega) \end{aligned} \quad (19)$$

Исключая из этих уравнений функцию $\varphi_j(\omega)$, получаем уравнение для амплитуды $f_\lambda(\vec{k}, \omega)$

$$(\omega - \omega_k) f_\lambda(\vec{k}, \omega) - \frac{1}{\omega - \omega_0} \sum_{\vec{k}'\lambda'} J_{\lambda\lambda'}(\vec{k}, \vec{k}') f_{\lambda'}(\vec{k}', \omega) = i \delta_{\vec{k}, \vec{k}_0} \delta_{\lambda, \lambda_0} \quad (20)$$

где

$$J_{\lambda\lambda'}(\vec{k}, \vec{k}') = \sum_j Q_{\vec{k}\lambda}^j Q_{\vec{k}'\lambda'}^{j*} e^{i(\vec{k}' - \vec{k})\vec{x}_j} \quad (21)$$

Мы видим, что амплитуда $f_\lambda(\vec{k}, \omega)$ пропорциональна функции Грина уравнения (20) или запаздывающей функции распространения фотона. Взаимодействие молекул с электромагнитным полем описывается оператором \hat{J} . В нулевом по взаимодействию приближении имеем

$$f_\lambda^{(0)}(\vec{k}, \omega) = i G_0(\omega_k, \omega) \delta_{\vec{k}, \vec{k}_0} \delta_{\lambda, \lambda_0} \quad (22)$$

где функция Грина $G_0(\omega_k, \omega)$ имеет вид

$$G_0(\omega_k, \omega) = \frac{1}{\omega - \omega_k} \quad (23)$$

Производя итерации, имеем

$$f = i \left\{ G_0 + G_0 \frac{\hat{J}}{\omega - \omega_0} G_0 + G_0 \frac{\hat{J}}{\omega - \omega_0} G_0 \frac{\hat{J}}{\omega - \omega_0} G_0 + \dots \right\} \quad (24)$$

Нас будет интересовать величина амплитуды $f_\lambda(\vec{k}, \omega)$, усредненная по координатам центров тяжести всех молекул. Обозначая это усреднение чертой, напишем

$$\overline{f_\lambda(\vec{k}, \omega)} = i \overline{G_\lambda(\vec{k}, \omega)} \quad (25)$$

Функция Грина $G_\lambda(\vec{k}, \omega)$ определяется усредненным рядом (24)

$$G_\lambda(\vec{k}, \omega) = G_0 + G_0 \frac{\hat{J}}{\omega - \omega_0} G_0 + G_0 \frac{\hat{J}}{\omega - \omega_0} G_0 \frac{\hat{J}}{\omega - \omega_0} G_0 + \dots \quad (26)$$

При усреднении по координатам \vec{x}_j возникает возможность использования разработанных методов графической техники. (В простейших случаях эта техника первоначально разрабатывалась в работах [7]).

Сопоставим каждому члену ряда (26) график, в котором функции Грина G отвечает сплошная линия, а оператору \hat{J} - точка. В каждом члене ряда (26) усредняется произведение операторов \hat{J} . Рассмотрим метод усреднения на примере члена третьего порядка, содержащего три оператора

$$\begin{aligned} & \overline{J_{\lambda_0\lambda_1}(\vec{k}_0, \vec{k}_1) J_{\lambda_1\lambda_2}(\vec{k}_1, \vec{k}_2) J_{\lambda_2\lambda_3}(\vec{k}_2, \vec{k}_3)} = \\ & = \sum_{j_1, j_2, j_3} Q_{\vec{k}_0\lambda_0}^{j_1} Q_{\vec{k}_1\lambda_1}^{j_1*} e^{-i(\vec{k}_0 - \vec{k}_1)\vec{x}_{j_1}} Q_{\vec{k}_1\lambda_1}^{j_2} Q_{\vec{k}_2\lambda_2}^{j_2*} e^{-i(\vec{k}_1 - \vec{k}_2)\vec{x}_{j_2}} Q_{\vec{k}_2\lambda_2}^{j_3} Q_{\vec{k}_3\lambda_3}^{j_3*} e^{-i(\vec{k}_2 - \vec{k}_3)\vec{x}_{j_3}} \end{aligned} \quad (27)$$

В этом выражении имеются члены, где все три индекса j различны.

Среднее от таких членов распадается на произведение средних. Далее имеются члены с парой совпадающих индексов j . Среднее от них распадается на произведение средних от одного и от двух операторов \hat{J} . Наконец, имеются члены, у которых все три индекса j совпадают. Таким образом среднее (27) распадается на сумму различных средних. Приравнивание индексов j различных операторов \hat{J} с последующим усреднением будем обозначать на графиках соединением пунктиром соответствующих узлов. Рассмотренный член, например, приводит к следующим графикам, изображенным на рис.1.

При усреднении экспоненциальных функций, входящих в \hat{J} возникает δ - символ, означающий закон сохранения импульса: сумма всех импульсов линий, входящих в узлы, соединенные пунктиром, равна сумме импульсов линий, выходящих из них. Каждому узлу отвечает множитель $Q_{\vec{k}_1, \lambda_1}^j Q_{\vec{k}_2, \lambda_2}^{j*} (\omega - \omega_0)$. Так, например, графику рис.1б отвечает следующее

$$\frac{1}{(\omega - \omega_0)^3 (\omega - \omega_{k_0})^3} \sum_{j_1} |Q_{\vec{k}_0, \lambda_0}^{j_1}|^2 \sum_j |Q_{\vec{k}_1, \lambda_1}^j|^2 \sum_{\vec{k}_2, \lambda_2} \frac{|Q_{\vec{k}_2, \lambda_2}^j|^2}{\omega - \omega_{k_2}} \quad (28)$$

После интегрирования по вектору \vec{k}_2 и последующего усреднения по направлениям векторов \vec{M}^j, \vec{M}^{j*} , получаем

$$\frac{1}{(\omega - \omega_0)^3 (\omega - \omega_{k_0})^3} \left(\frac{1}{4\tau^2}\right)^2 \left(\frac{-iW}{2}\right)$$

где величины τ и W определены соотношениями (3), (7). Мы опустили действительную часть интеграла по $d\omega_k$, т.к. её роль сводится лишь к малому радиационному сдвигу частоты ω_0 . Кроме того, при написании выражения (28) мы учли, что после усреднения по направлениям вектора \vec{M}^j возникает δ символ, выражающий закон сохранения поляризации кванта.

Введем понятие обобщенного узла, определив его суммой следующих графиков (рис.2).

Обозначая обобщенный узел через \hat{I} , имеем

$$I = Q_{\vec{k}_1, \lambda_1}^j Q_{\vec{k}_2, \lambda_2}^{j*} e^{-i(\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \vec{x}_j} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{(\omega - \omega_0)^n} \left(\sum_{\vec{k}_\lambda} \frac{|Q_{\vec{k}_\lambda}^j|^2}{\omega - \omega_k} \right)^n = \frac{Q_{\vec{k}_1, \lambda_1}^j Q_{\vec{k}_2, \lambda_2}^{j*}}{\omega - \omega_0 + \frac{iW}{2}} e^{-i(\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \vec{x}_j} \quad (29)$$

Заметим, что обобщенный узел (29) отличается от \hat{J} добавлением $\frac{iW}{2}$ в знаменателе, т.е. учетом конечности времени жизни в возбужденном состоянии молекулы. Графики с обобщенными узлами строятся по тому же принципу, что и с не обобщенными узлами, за исключением случая простейшей собственно-энергетической петли, в которой лишь один из узлов должен быть заменен обобщенным.

Функция Грина G может быть обычным образом выражена через собственно-энергетическую часть Σ

$$G_\lambda(\vec{k}, \omega) = \frac{\delta_{\vec{k}, \vec{k}_0} \delta_{\lambda, \lambda_0}}{G_0^{-1} - \Sigma} = \frac{\delta_{\vec{k}, \vec{k}_0} \delta_{\lambda, \lambda_0}}{\omega - \omega_k - \Sigma} \quad (30)$$

где Σ - сумма всех неприводимых графиков. В первом порядке Σ определяется графиком рис.3

$$\Sigma^{(1)} = \frac{1}{\omega - \omega_0} \sum_j |Q_{\vec{k}_0, \lambda_0}^j|^2 = \frac{1}{4\tau^2} \cdot \frac{1}{\omega - \omega_0} \quad (31)$$

Определенная последовательность графиков следующих порядков может быть выражена через обобщенный узел, так что $\Sigma^{(2)}$ представляется графиком рис.4

$$\Sigma^{(2)} = \frac{1}{(\omega - \omega_0)(\omega - \omega_0 + \frac{iW}{2})} \sum_j |Q_{\vec{k}_0, \lambda_0}^j|^2 \sum_{\vec{k}_1, \lambda_1} \frac{|Q_{\vec{k}_1, \lambda_1}^j|^2}{\omega - \omega_{k_1}} = \frac{1}{4\tau^2} \left(\frac{-iW}{2}\right) \frac{1}{(\omega - \omega_0)(\omega - \omega_0 + \frac{iW}{2})} \quad (32)$$

Складывая выражения (31) и (32), находим Σ

$$\Sigma = \Sigma^{(1)} + \Sigma^{(2)} = \frac{1}{4\tau^2} \frac{1}{\omega - \omega_0 + \frac{iW}{2}} \quad (33)$$

Соответственно функция Грина (30) имеет вид:

$$G_{\lambda}(\vec{k}, \omega) = G(\omega_k, \omega) \delta_{\vec{k}, \vec{k}_0} \delta_{\lambda, \lambda_0} = \frac{\delta_{\vec{k}, \vec{k}_0} \delta_{\lambda, \lambda_0}}{\omega - \omega_k - \left[4\tau^2 \left(\omega - \omega_0 + \frac{iW}{2} \right) \right]^{-1}} \quad (34)$$

Функция Грина (34) имеет два полюса по ω . Полюсные значения ω соответственно равны

$$\omega = \omega_0 + \frac{1}{2}\Delta - \frac{iW}{4} \pm \frac{1}{2} \sqrt{\Delta^2 + \frac{1}{\tau^2} + iW\Delta - \frac{W^2}{4}} \quad (35)$$

где $\Delta = \omega_k - \omega_0$

Выражения для полюсных значений ω и соответственно, для функции Грина (34) существенно упрощаются при выполнении неравенств

$$W\tau \gg 1 \quad \text{и} \quad W\tau \ll 1$$

где

$$(W\tau)^2 = \frac{1}{2T\rho\lambda^3} \frac{W}{\omega_0} \quad (36)$$

Фактически, в оптической области, как правило, выполняется неравенство $W\tau \ll 1$. Однако обратный предельный случай (очень разреженная среда) также представляет определенный интерес. Получаемые при этом результаты переходят в известные формулы резонансной флуоресценции для одной молекулы [1].

Рассмотрим сначала случай $W\tau \gg 1$. Соответственно полюсные значения частот имеют вид

$$\begin{aligned} \omega^{(1)} &= \omega_k - \frac{i\Gamma}{2} \\ \omega^{(2)} &= \omega_0 - \frac{iW}{2} + \frac{i\Gamma}{2} \end{aligned} \quad (37)$$

где

$$\Gamma = \frac{1}{4\tau^2} \frac{W}{\Delta^2 + \frac{W^2}{4}} \quad (38)$$

Мы видим, что полюса, отвечающие фотону и молекуле разделились, причем, как нетрудно видеть, примесь молекулярного состояния, ничтожна, так что функция Грина имеет вид

$$G(\omega_k, \omega) = \frac{1}{\omega - \omega_k + \frac{i\Gamma}{2}} \quad (39)$$

Этот случай соответствует малости когерентного взаимодействия электромагнитного поля с молекулами, приводящего к появлению диэлектрической проницаемости среды. Основным процессом является резонансное рассеяние, так что $\Gamma = c\rho\sigma_{рез}$ (см. [1]). Длина свободного пробега l при этом оказывается равной по порядку величины

$$l \sim \frac{c}{\Gamma} \sim \frac{1}{\rho\lambda^2} \quad (40)$$

Распространение этой формулы на системы с произвольной плотностью ρ , т.е. в область $W\tau \ll 1$ приводит к абсурдному результату $l \ll \lambda$.

Рассмотрим теперь случай $W\tau \ll 1$. Функция Грина имеет вид

$$G(\omega_k, \omega) = \frac{\omega - \omega_0 + \frac{iW}{2}}{(\omega - \omega_+ + \frac{iW_+}{2})(\omega - \omega_- + \frac{iW_-}{2})} \quad (41)$$

где ω_{\pm} даются выражениями (13), а

$$W_{\pm} = \frac{1}{2}W \left(1 \mp \frac{\Delta}{\Omega} \right) \quad (42)$$

В этом случае функция Грина описывает кванты электромагнитного поля в среде (кванты среды), т.е. в отличие от предыдущего случая когерентная часть взаимодействия, имеющая порядок $1/\tau$ (действительная часть Σ) существенно больше некогерентной части ($\text{Im} \Sigma$),

которая порядка W . Кванты среды содержат примесь состояния молекулы на верхнем уровне, что приводит к затуханию с вероятностью W_+ и W_- . Множители $\frac{1}{2}(1 \mp \frac{\Delta}{\Omega})$ отвечают относительному времени пребывания кванта в молекулярном состоянии.

Функция Грина (4I) может быть представлена в виде суперпозиции гриновских функций, отвечающих квантам в среде первого и второго типа. Действительно, используя выражения (9), (13) можно найти непосредственно затухания элементарных возбуждений в среде, т.е. найти запаздывающую функцию распространения кванта среды. Для одночастичных состояний коммутатор операторов $b_{\vec{k}\lambda}$ и $b_{\vec{k}\lambda}^\dagger$ строго является числом. Поэтому начальное состояние типа $\alpha_{\vec{k}\lambda}^+ |0\rangle$ в любой момент времени может быть выражено в виде

$$\Psi(t) = \sum_{r=1}^2 \sum_{\vec{k}\lambda} \eta_{\lambda}^{(r)}(\vec{k}, t) \alpha_{\vec{k}\lambda}^{(r)+} |0\rangle e^{iN \frac{\omega_r}{2} t} \quad (43)$$

Согласно (9), (15) амплитуды $\eta_{\lambda}^{(1)}(\vec{k}, t)$, $\eta_{\lambda}^{(2)}(\vec{k}, t)$ и $f_{\lambda}(\vec{k}, t)$

связаны соотношением

$$f_{\lambda}(\vec{k}, t) = \sum_{r=1}^2 \eta_{\lambda}^{(r)}(\vec{k}, t) v_{\kappa}^{(r)} \quad (44)$$

Из уравнения Шредингера

$$i\dot{\Psi} = H\Psi$$

Используя для гамильтониана H выражение (I), получаем уравнения для амплитуд $\eta_{\lambda}^{(r)}(\vec{k}, t)$. Для лапласовских образов $\eta_{\lambda}^{(1)}(\vec{k}, \omega)$ и $\eta_{\lambda}^{(2)}(\vec{k}, \omega)$ эти уравнения имеют вид

$$\begin{aligned} (\omega - \omega_+) \eta_{\lambda}^{(1)}(\vec{k}, \omega) &= i \eta_{\lambda}^{(1)}(\vec{k}, t=0) + \sqrt{1 + \frac{\Delta}{\Omega}} \sum_{\vec{k}'\lambda'} J_{\lambda\lambda'}(\vec{k}, \vec{k}') \frac{\tau \Omega'}{\omega - \omega_'} \sqrt{1 - \frac{\Delta'}{\Omega'}} \eta_{\lambda'}^{(1)}(\vec{k}', \omega) \\ (\omega - \omega_-) \eta_{\lambda}^{(2)}(\vec{k}, \omega) &= i \eta_{\lambda}^{(2)}(\vec{k}, t=0) + \\ &+ \sqrt{1 - \frac{\Delta}{\Omega}} \sum_{\vec{k}'\lambda'} J_{\lambda\lambda'}(\vec{k}, \vec{k}') \frac{\tau \Omega'}{\omega - \omega_'} \sqrt{1 + \frac{\Delta'}{\Omega'}} \eta_{\lambda'}^{(2)}(\vec{k}', \omega), \end{aligned} \quad (45)$$

где $\Delta' = \omega_{\kappa'} - \omega_0$.

Эта система уравнений написана приближенно. Опущены малые поправочные члены порядка $W/\tau \ll 1$. С точностью до таких малых членов мы имеем независимые уравнения для амплитуд $\eta^{(1)}$ и $\eta^{(2)}$. Следовательно, в этом приближении отсутствуют переходы квантов среды одного типа в другой. Последнее обстоятельство связано с тем, что разности энергий этих состояний $\omega_+ - \omega_- \sim 1/\tau$, в то время как релаксационные ширины порядка W .

Уравнения (45) решаем при начальных условиях

$$\eta_{\lambda}^{(1)}(\vec{k}, t=0) = \delta_{\vec{k}, \vec{k}_0} \delta_{\lambda, \lambda_0}; \quad \eta_{\lambda}^{(2)}(\vec{k}, t=0) = \delta_{\vec{k}, \vec{k}_0} \delta_{\lambda, \lambda_-} \quad (46)$$

Найдем амплитуды $\eta_{\lambda}^{(r)}(\vec{k}, \omega)$, усредненные по координатам центров тяжести молекул среды.

Аналогично (25) обозначим

$$\overline{\eta_{\lambda}^{(r)}(\vec{k}, \omega)} = i G_{\lambda}^{(\alpha_r)}(\vec{k}, \omega) \quad (47)$$

Используя развитую графическую технику, легко находим

$$\begin{aligned} G_{\lambda}^{(\alpha_1)}(\vec{k}, \omega) &= G_{\alpha_1}(\omega_{\kappa}, \omega) \delta_{\vec{k}, \vec{k}_0} \delta_{\lambda, \lambda_0} = \frac{\delta_{\vec{k}, \vec{k}_0} \delta_{\lambda, \lambda_0}}{\omega - \omega_+ + \frac{1}{2} i W_+} \\ G_{\lambda}^{(\alpha_2)}(\vec{k}, \omega) &= G_{\alpha_2}(\omega_{\kappa}, \omega) \delta_{\vec{k}, \vec{k}_0} \delta_{\lambda, \lambda_-} = \frac{\delta_{\vec{k}, \vec{k}_0} \delta_{\lambda, \lambda_-}}{\omega - \omega_- + \frac{1}{2} i W_-} \end{aligned} \quad (48)$$

Нетрудно видеть, что функция Грина (4I) может быть выражена через суперпозицию функций (48)

$$\begin{aligned} G(\omega_{\kappa}, \omega) &= \frac{1}{2} \left(1 + \frac{\Delta}{\Omega}\right) \frac{1}{\omega - \omega_+ + \frac{1}{2} i W_+} + \frac{1}{2} \left(1 - \frac{\Delta}{\Omega}\right) \frac{1}{\omega - \omega_- + \frac{1}{2} i W_-} = \\ &= \sum_{r=1}^2 |v_{\kappa}^{(r)}|^2 G_{\alpha_r}(\omega_{\kappa}, \omega) \end{aligned} \quad (49)$$

Это равенство в точности соответствует соотношению (44). Действительно, начальные условия (17), выраженные через амплитуды $\eta_{\lambda}^{(r)}$, имеют вид

$$\eta_{\lambda}^{(r)}(\vec{k}, t=0) = v_k^{(r)} \delta_{\vec{k}, \vec{k}_0} \delta_{\lambda, \lambda_0}, \quad r=1,2 \quad (50)$$

При таких начальных условиях решение системы (45) имеет вид

$$\eta_{\lambda}^{(r)}(\vec{k}, \omega) = i v_k^{(r)} G_{\lambda}^{(r)}(\vec{k}, \omega) \quad (51)$$

Мы видим, следовательно, что соотношение (49) при условии (51) в точности соответствует (44).

Определим теперь, с какой точностью найдено выражение для функции Грина (41), т.е. оценим порядок величины отброшенных графиков. Простейший из них имеет вид рис.5. По порядку величины для Σ' , определяющейся этим графиком, имеем

$$\Sigma' \sim \frac{\rho^2}{(\omega - \omega_0 + \frac{1}{2}iW)^4} \frac{c^6 W^4}{\omega_0^5} \quad (52)$$

При $W\tau \gg 1$, по порядку величины $\omega - \omega_0 + \frac{1}{2}iW \sim W$ и отношение

$$\frac{\Sigma'}{\Sigma} \sim \rho \lambda^3 \sim \frac{1}{(\omega_0 \tau)(W\tau)} \ll 1$$

При $W\tau \ll 1$, как видно из (13) $\omega - \omega_0 + \frac{1}{2}iW \sim \omega - \omega_0 \sim \frac{1}{\tau}$ и отношение

$$\frac{\Sigma'}{\Sigma} \sim W\tau \frac{W}{\omega_0} \ll 1.$$

Замена в графиках типа рис.4 промежуточной функции G_0 на более точную G функцию приводит к малым поправкам порядка $(1/\omega_0 \tau) \ll 1$

Производя обратное преобразование Лапласа, получаем при $W\tau \gg 1$

$$\overline{f_{\lambda_0}(\vec{k}_0, t)} = e^{-i\omega_0 t - \frac{\Gamma}{2} t} \quad (53)$$

и при $W\tau \ll 1$

$$\overline{f_{\lambda}(\vec{k}_0, t)} = \frac{1}{2} \left\{ \left(1 + \frac{\Delta}{\Omega}\right) e^{-i\omega_+ t - \frac{W_+}{2} t} + \left(1 - \frac{\Delta}{\Omega}\right) e^{-i\omega_- t - \frac{W_-}{2} t} \right\} \quad (54)$$

При $|\Delta| \gg 1/\tau$, т.е. вдали от резонанса выражение (54) переходит в выражение (53).

Для квадрата модуля амплитуды в этом приближении имеем

$$|\overline{f_{\lambda_0}(\vec{k}_0, t)}|^2 = \frac{1}{4} \left\{ \left(1 + \frac{\Delta}{\Omega}\right)^2 e^{-W_+ t} + \left(1 - \frac{\Delta}{\Omega}\right)^2 e^{-W_- t} + \frac{2}{\Omega^2 \tau^2} e^{-\frac{W}{2} t} \cos \Omega t \right\} \quad (55)$$

При $Wt \ll 1$ мы приходим к ранее полученному результату [2,5] (если взяты такие же начальные условия).

Если в начальный момент в системе имелся квант среды, первого или второго рода, то для зависящих от времени амплитуд, согласно (47), (48), имеем

$$\begin{aligned} \overline{\eta_{\lambda_0}^{(1)}(\vec{k}_0, t)} &= e^{-i\omega_+ t - \frac{W_+}{2} t} \\ \overline{\eta_{\lambda_0}^{(2)}(\vec{k}_0, t)} &= e^{-i\omega_- t - \frac{W_-}{2} t} \end{aligned} \quad (56)$$

Отметим, что при $W\tau \ll 1$ релаксационные времена оказываются порядка $1/W$ и длина свободного пробега l равна

$$l \sim \frac{c}{W} \sim \lambda \frac{\omega_0}{W} \gg \lambda$$

IV. Заключение

Полученная в настоящей работе функция Грина приводит к затуханию во времени вероятности обнаружения данного фотона. Это обусловлено тем, что по распоряжению молекул усреднялась сама амплитуда вероятности, а не её квадрат модуля. Физически это означает, что мы учитывали процессы ухода из данного состояния во все другие, но не учитывали процессов прихода. Учет прихода фотонов, т.е. полное исследование кинетики процесса будет проведено в следующей работе.

Отметим также, что в работе не учитывался разброс молекулярных уровней, существующий в реальных системах. Учет этого разброса может повлиять на результаты. Соответствующее исследование будет проведено.

В заключение авторы выражают благодарность А.И.Алексееву за полезные обсуждения.

Литература

1. В.Гайтлер. Квантовая теория излучения, ИИЛ, 1956 г.
2. А.И.Алексеев, Ю.А.Вдовин, В.М.Галицкий. ЖЭТФ, 46, 320 (1964).
3. А.П.Казанцев, В.С.Смирнов. ЖЭТФ, 46, 182 (1964).
4. E.T. Jaynes, F.M. Cummings., Proc. of IEEE, 51, 89 (1963).
5. А.И.Алексеев, В.М.Галицкий, ЖЭТФ.
6. А.И.Ахиезер, В.Г.Барьяхтер, М.И.Качанов. УФН, 71, 533 (1960).
7. А.А.Абрикосов, Л.П.Горьков. ЖЭТФ, 35, 1558 (1958).
8. S.F. Edwards, Phil. Mag. 3, 1020 (1958)

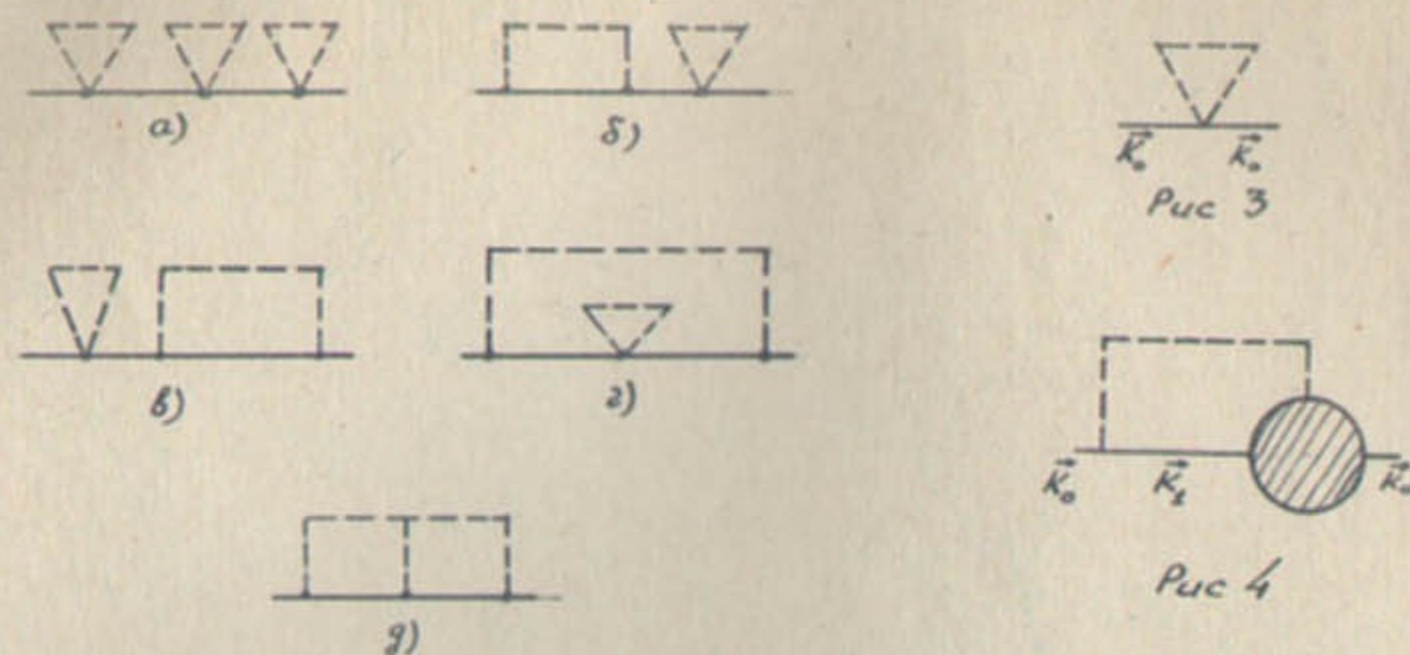


Рис. 1

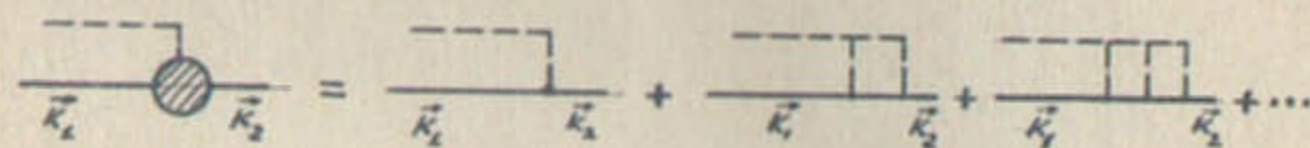


Рис. 2

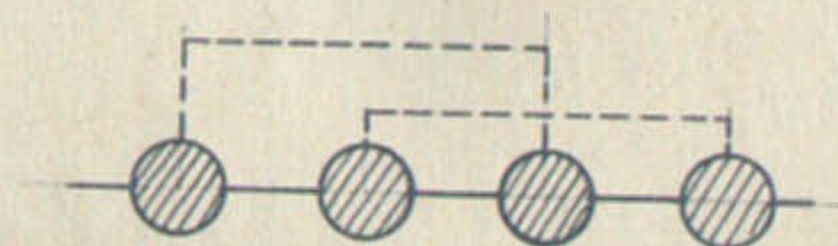


Рис. 5