

Гигантское усиление света в атомных кластерах

О. Н. Гадомский, И. В. Гадомская, К. К. Алтунин^{†1)}

Ульяновский государственный университет, 432700 Ульяновск, Россия

[†] Ульяновский государственный педагогический университет им. И. Н. Ульянова, 432700 Ульяновск, Россия

Поступила в редакцию 13 ноября 2008 г.

После переработки 14 июля 2009 г.

Показано, что интенсивность электрического дипольного излучения атомного кластера при определенной структуре расположения атомов может значительно увеличиться (в $10^3 \div 10^8$ раз) по сравнению с интенсивностью излучения изолированного атома, благодаря межатомному взаимодействию. При этом эффект гигантского усиления света сопровождается значительной перестройкой спектра излучения.

PACS: 36.40.+d, 61.46.+w, 61.80.Az

В экспериментальных работах [1, 2] сообщалось об обнаружении интенсивной фотолюминесценции кластеров золота в диапазоне от ультрафиолетового до ближнего инфракрасного излучений в зависимости от числа атомов золота в кластере. Причем квантовый выход люминесценции был очень высок, от 70% для самых маленьких кластеров в Au_5 до 10% для самых больших Au_{31} . Причиной возникновения этого эффекта является наведение поляризующих полей в местах расположения атомов кластера. В эффекте гигантского комбинационного рассеяния [3] известно, что если молекула типа молекул пиридина адсорбируется или находится вблизи поверхности металла (например, серебра), то поперечное сечение комбинационного рассеяния для многих их колебательных мод возрастает в $10^2 \div 10^6$ раз по сравнению с аналогичными величинами для свободных молекул.

Отличительной особенностью эффекта усиления света, представленного в данной статье, является то, что инверсия квантового перехода, то есть разность вероятностей обнаружения атомов кластера в возбужденном и основном состояниях, практически не отличается от стационарного значения, равного $w_0 = 1/2$. Эффект усиления обусловлен не сверхизлучением атомного кластера, а когерентным влиянием поляризующих полей внутри кластера, приводящим к изменению контура естественной ширины линии квантового перехода.

Рассмотрим двухатомный кластер, располагая начало системы координат в месте расположения одного из атомов, например, атома 1. Ось кластера \mathbf{R}_{12} , соединяющая центры атомов, направлена вдоль оси y . Волновой вектор \mathbf{k}_0 внешней волны направлен перпендикулярно оси \mathbf{R}_{12} , при этом вектор поляризации

внешней волны может быть направлен либо вдоль оси \mathbf{R}_{12} (y -поляризация), либо перпендикулярно этой оси (x, z -поляризация).

В работах [4, 5] было показано, что в атомных кластерах при равновесном значении инверсии $w_0 = -1$ образуются линейные размерные резонансы, частоты которых существенно отличаются от частоты перехода в спектре атомов кластера. Оптические свойства нелинейных резонансов, когда инверсия w отличается от -1 , были рассмотрены в работе [6]. Было показано, что размерные резонансы имеют важное значение в оптической ближнепольной микроскопии [7], в процессах управления движением атомов лазерным полем [8]. В данной статье, в отличие от [4, 5], основное внимание уделим не размерным резонансам, а тем причинам, которые могут существенно влиять на естественную ширину уровней атомов в кластере.

Описание оптических свойств двухатомного кластера проведем на основе следующего уравнения:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_I(\mathbf{r}, t) + \sum_{j=1}^2 \nabla \times \nabla \times \frac{\mathbf{p}_j \left(t - \frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|}{c} \right)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|}, \quad (1)$$

где $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ – вектор напряженности электрического поля световой волны в любой точке наблюдения \mathbf{r} внутри и вне кластера, $\mathbf{E}_I(\mathbf{r}, t)$ – вектор напряженности электрического поля внешнего излучения, c – скорость света в вакууме, \mathbf{r}_j – радиус-векторы атомов 1 и 2 в кластере, \mathbf{p}_j – индуцированный дипольный момент j -го атома, дифференцирование ведется по координатам точки наблюдения. Поле внешнего излучения представляет суперпозицию слабого поля когерентной волны и сильного поля оптической на-

¹⁾e-mail: teleportation@yandex.ru

качки. В атомном кластере слабое поле создает стационарные состояния, характеризующиеся индуцированными дипольными моментами атомов кластера. Сильное поле оптической накачки создает начальное состояние инверсии $w = 1/2$, отличающееся от равновесного значения $w_0 = -1$. После создания начального состояния инверсии сильное поле накачки может быть отключено к моменту начала действия слабого поля когерентной волны. Дипольные моменты атомов представим в виде

$$\mathbf{p}_j = \frac{1}{2} \mathbf{X}_j \exp(-i\omega t) + \frac{1}{2} \mathbf{X}_j^* \exp(i\omega t), \quad (2)$$

где ω – частота внешней волны, а величины \mathbf{X}_j подчиняются уравнениям

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathbf{X}_j}{\partial t} &= -i \mathbf{X}_j (\omega_0 - \omega) - i \frac{2}{\hbar} |\mathbf{d}_{0j}|^2 \mathbf{E}_{0j} - \frac{\mathbf{X}_j}{T_2}, \\ \frac{\partial w_j}{\partial t} &= \frac{i}{\hbar} (\mathbf{X}_j^* \mathbf{E}_{0j} - \mathbf{X}_j \mathbf{E}_{0j}^*) - \frac{w_j - w_0}{T_1}. \end{aligned} \quad (3)$$

Здесь ω_0 – частота квантового перехода в спектре атомов кластера, $|\mathbf{d}_{0j}|$ – дипольный момент квантового перехода, w_j – инверсия j -го атома, \mathbf{E}_{0j} – напряженность электрического поля в месте расположения j -го атома без множителя $\exp(-i\omega t)$, T_2' , T_1 – времена фазовой и энергетической релаксаций. Действующие поля \mathbf{E}_{01} и \mathbf{E}_{02} в местах расположения атомов кластера определим из системы уравнений:

$$\mathbf{E}_{01} = \mathbf{E}_{0I} + \frac{1}{2} \hat{G} \mathbf{X}_2 \exp\left(i \frac{\omega}{c} R_{12}\right), \quad (4)$$

$$\mathbf{E}_{02} = \mathbf{E}_{0I} \exp(i\mathbf{k}_0 \mathbf{R}_{12}) + \frac{1}{2} \hat{G} \mathbf{X}_1 \exp\left(i \frac{\omega}{c} R_{12}\right),$$

где \mathbf{E}_{0I} – амплитуда внешней плоской волны, а вид тензора \hat{G} можно легко определить из уравнения (1), \mathbf{k}_0 – волновой вектор внешней волны.

Рассмотрим квазистационарное решение уравнений (3) при выполнении условий

$$\frac{\partial w_j}{\partial t} \neq 0, \quad \frac{\partial \mathbf{X}_j}{\partial t} = 0.$$

Будем считать, что атомы в кластере одинаковые, поэтому индекс, нумерующий атомы в кластере, опустим. Подставляя выражения (4) в уравнения (3), получим следующие равенства:

$$\mathbf{X}_j = -w_j \alpha_j \mathbf{E}_{0j} = -w_j \alpha_{\text{eff}} \mathbf{E}_{0I}(\mathbf{r}_j), \quad (5)$$

где квантовая поляризуемость атома

$$\alpha_j = \frac{2|\mathbf{d}_{0j}|^2}{\hbar} \frac{1}{\omega_{0j} - \omega - i \frac{1}{T_2'}}, \quad (6)$$

а α_{eff} – эффективная поляризуемость атома, учитывающая взаимное влияние атомов в кластере. Решение (5) означает, что при малых значениях когерентной релаксации T_2' индуцированные дипольные моменты атомов кластера быстро достигают квазистационарных значений. При этом инверсия, согласно уравнению (3), удовлетворяет условию

$$\frac{\partial w_j}{\partial t} = -w_j \left(\frac{1}{T_1} + |\mathbf{E}_0|^2 \frac{\text{Im } \alpha}{\hbar} \right) + \frac{w_0}{T_1}, \quad (7)$$

где время энергетической релаксации T_1 удовлетворяет условию $T_1 \gg T_2'$. Это уравнение совпадает с уравнением движения для разности населенностей, которое используется в полуклассической теории лазера. Решение уравнения (7) имеет вид

$$\begin{aligned} w_j(t) &= w_j(0) \exp\left(-|\mathbf{E}_0|^2 \hbar^{-1} \text{Im } \alpha t - t T_1^{-1}\right) + \\ &+ w_0 \frac{1 - \exp\left(-|\mathbf{E}_0|^2 \hbar^{-1} \text{Im } \alpha t - t T_1^{-1}\right)}{T_1 |\mathbf{E}_0|^2 \hbar^{-1} \text{Im } \alpha + 1}, \end{aligned} \quad (8)$$

где $w_j(0)$ – начальное значение инверсии $w_j(t)$. Решение (8) показывает, что на скорость распада влияют как расстройка от резонанса, так и напряженность действующего поля, и она может быть существенно больше $1/T_1$, особенно для атомов вблизи точного резонанса. При достаточном удалении от резонанса $w_j(t)$ не зависит от $|\mathbf{E}_0|^2$. Применение сильной некогерентной оптической накачки, позволяющей достигнуть значения $w_0 = 1/2$, позволяет, как видно из (8), получить в слабом когерентном поле стационарное значение $w_j = 1/2$ при $t \gg T_1$.

В данной статье используем приближение среднего (действующего) поля для описания динамики составляющих димер взаимодействующих атомов, находящихся в поле оптического излучения. Обусловленные кулоновским взаимодействием корреляции в динамике димера имело бы смысл рассматривать, если бы задача была нестационарной, например, на начальных этапах наведения корреляций между двумя возбужденными атомами. Рассматриваемая же задача является стационарной, протекающей при включенных внешних оптических полях. При этом инверсия в данной задаче является неизменной величиной, что соответствует взаимодействию двух классических диполей во внешнем поле оптического излучения. Справедливость подхода с применением локальных классических полей подтверждается, например, при интерпретации экспериментов по гигантскому комбинационному рассеянию света [3].

Рассмотрим случай y -поляризации, когда индуцированные дипольные моменты атомов в кластере на-

правлены вдоль оси y . В этом случае ($\mathbf{E}_{0I} \parallel \mathbf{R}_{12}$) имеем

$$\alpha_{\text{eff}}^y = \frac{\alpha}{1 - A_R^y \alpha}, \quad (9)$$

где

$$A_R^y = -\frac{2w_j}{R_{12}^3} \left(1 - i\frac{\omega}{c}R_{12}\right) \exp\left(i\frac{\omega}{c}R_{12}\right). \quad (10)$$

Коэффициент w_j в (10) связан с видом индуцированных дипольных моментов атомов кластера (5), для которых $w_1 = w_2 = w$. При этом, в соответствии с решением (8) инверсия мало отличается от стационарного значения $w_j = 1/2$ в поле стационарного излучения.

Определим дисперсионные свойства эффективной поляризуемости α_{eff}^y . Для этого выделим ее мнимую часть. Подставим (10) в (9) и после преобразований получим, что

$$\text{Im } \alpha_{\text{eff}}^y = \frac{2|\mathbf{d}_{0j}|^2 \hbar^{-1} \left(\frac{1}{T_2'} + \text{Im } \Omega\right)}{(\omega_{0j} - \omega - \text{Re } \Omega)^2 + \left(\frac{1}{T_2'} + \text{Im } \Omega\right)^2}, \quad (11)$$

где

$$\Omega = \frac{2|\mathbf{d}_{0j}|^2}{\hbar} A_R^y,$$

$$\text{Re } A_R^y = -\frac{2w_j}{R_{12}^3} \left(\cos \frac{\omega R_{12}}{c} + \frac{\omega R_{12}}{c} \sin \frac{\omega R_{12}}{c}\right),$$

$$\text{Im } A_R^y = -\frac{2w_j}{R_{12}^3} \left(\sin \frac{\omega R_{12}}{c} - \frac{\omega R_{12}}{c} \cos \frac{\omega R_{12}}{c}\right).$$

Как видно из выражения (11), при

$$\frac{1}{T_2'} + \frac{2|\mathbf{d}_{0j}|^2}{\hbar} \text{Im } A_R^y = 0 \quad (12)$$

мнимая часть эффективной поляризуемости атома в кластере обращается в нуль. При этом выделяются области частот, при которых $\text{Im } \alpha_{\text{eff}}^y$ принимает положительные и отрицательные значения, то есть знак дисперсии изменяется в зависимости от характера взаимодействия атомов в кластере. При $\omega R_{12} \ll c$ имеем

$$\text{Im } A_R^y = -\frac{\omega^3}{3c^3}. \quad (13)$$

Если учесть, что естественная ширина линии в атоме определяется как

$$\frac{2}{T_2'} = \frac{4}{3} \frac{|\mathbf{d}_{0j}|^2 \omega_{0j}^3}{\hbar c^3}, \quad (14)$$

то условие (12) выполняется при $\omega = \omega_{0j}$. Это означает, что запаздывающее взаимодействие атомов в кластере полностью компенсирует радиационный распад возбужденного состояния атома, а при соответствующих частотах роль квантовых переходов, возбуждающих атом в кластере вследствие их взаимодействия, становится важнее релаксационных квантовых переходов. Таким образом, атомный кластер в этой области частот способен усиливать внешнее излучение. При этом усиление света обусловлено процессами, происходящими не за счет изменения инверсии атома внутри атомного кластера, а за счет когерентных осцилляций индуцированных дипольных моментов атомов кластера, линейные размеры которого значительно меньше длины волны внешнего оптического излучения. Инверсия системы $w = 1/2$ отличается от равновесного значения $w_0 = -1$ благодаря присутствию сильного поля оптической накачки.

В случае поляризации внешнего поля, когда $\mathbf{E}_{0I} \perp \mathbf{R}_{12}$, имеем эффективную поляризуемость атома кластера

$$\alpha_{\text{eff}}^{x,z} = \frac{\alpha}{1 - A_R^{x,z} \alpha}, \quad (15)$$

где

$$A_R^{x,z} = w_j \left(\frac{1}{R_{12}^3} - i\frac{\omega}{cR_{12}^2} - \frac{\omega^2}{c^2 R_{12}}\right) \exp\left(i\frac{\omega}{c}R_{12}\right). \quad (16)$$

При $\omega R_{12} \ll c$ и $w = 1/2$ получим, что

$$\text{Im } A_R^{x,z} = -\frac{\omega^3}{3c^3}. \quad (17)$$

Это означает, что и в случае поляризации $\mathbf{E}_{0I} \perp \mathbf{R}_{12}$ атомный кластер, в котором атом находится в основном состоянии, способен усиливать внешнее стационарное оптическое излучение, интенсивность которого невелика и удовлетворяет условию $T_1 |\mathbf{E}_0|^2 \text{Im } \alpha \ll \hbar$. В слабом когерентном поле атомы кластера можно приближенно рассматривать как классические диполи, эффективная поляризуемость которых определяется формулами (9), (15), где инверсия w от поля не зависит.

На основе формул (9) и (15) можно рассмотреть также случай, когда оба атома кластера находятся в основном состоянии и инверсия $w = -1$ остается без изменения и соответствует ее равновесному значению. В этом случае запаздывающее взаимодействие атомов в кластере при $\omega R_{12} \ll c$ приводит лишь к увеличению естественной ширины линии атома (14) на величину $4|\mathbf{d}_{0j}|^2 \omega^3 / 3\hbar c^3$ без усиления внешнего

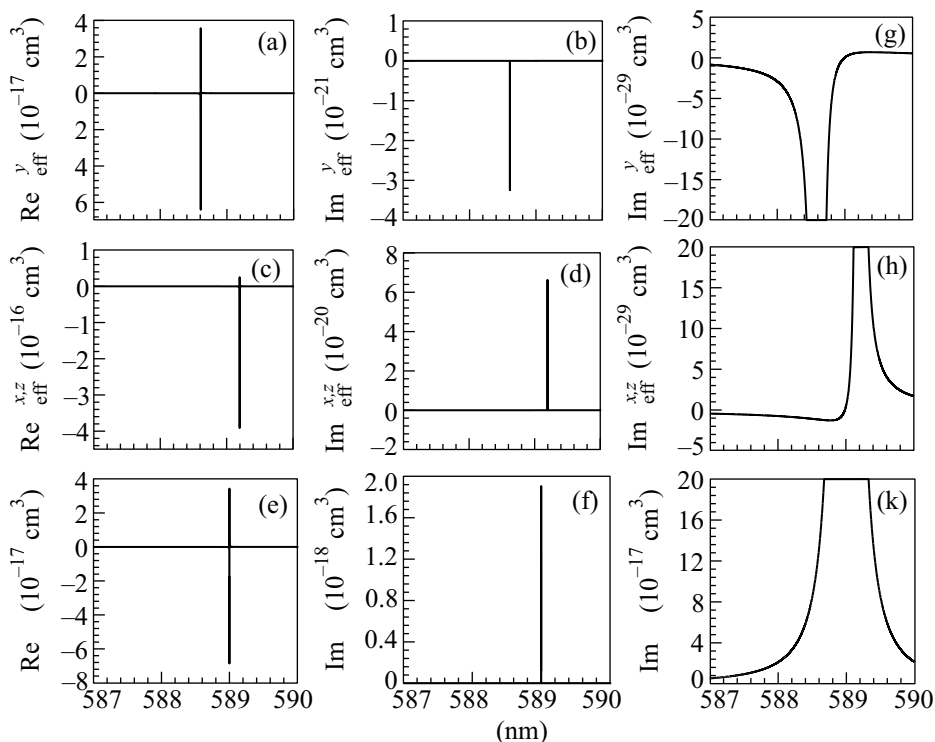


Рис.1. Дисперсионная зависимость эффективной поляризуемости атома Na в Na-Na димере. Расстояние между атомами $R_{12} = 1.8 \cdot 10^{-7}$ см, дипольный момент квантового перехода $|\mathbf{d}_0| = 2.56 \cdot 10^{-18}$ ед. СГСЭ, частота квантового перехода $\omega_0 = 0.3198 \cdot 10^{16}$ рад/с. Представлены дисперсионные зависимости эффективной поляризуемости атома Na в Na-Na димере: (a) $\text{Re} \alpha_{\text{eff}}^y$, (b) $\text{Im} \alpha_{\text{eff}}^y$, (c) $\text{Re} \alpha_{\text{eff}}^{x,z}$, (d) $\text{Im} \alpha_{\text{eff}}^{x,z}$, дисперсионная зависимость изолированного атома натрия (e) $\text{Re} \alpha$ и (f) $\text{Im} \alpha$, а также (g) $\text{Im} \alpha_{\text{eff}}^y$ в усеченном масштабе, (h) $\text{Im} \alpha_{\text{eff}}^{x,z}$ в усеченном масштабе, (k) $\text{Im} \alpha$ в усеченном масштабе от длины волны внешнего оптического излучения λ

излучения. При этом происходит расщепление спектральной линии на частоте ω_{0j} на две спектральные линии с частотами

$$\omega_{0j} - \frac{2|\mathbf{d}_{0j}|^2}{\hbar} \text{Re} A_R^y, \quad \omega_{0j} - \frac{2|\mathbf{d}_{0j}|^2}{\hbar} \text{Re} A_R^{x,z},$$

что соответствует двум линейным стационарным оптическим размерным резонансам.

Рассмотрим численный пример Na-Na димера, в котором рассматривается квантовый переход атома натрия из основного $3S$ -состояния в возбужденное $3P$ -состояние на длине волны $\lambda_0 = 589$ нм (желтая линия атома натрия). Естественная ширина линии перехода $3S-3P$ равна 10 МГц. На рис.1 представлена область отрицательной дисперсии эффективной поляризуемости атома натрия в двухатомном кластере. При этом область отрицательной дисперсии определяется расстоянием между атомами, хотя величина (13) не зависит от R_{12} . Это объясняется тем, что $\text{Re} A_R^y \approx 2R_{12}^{-3}$ при $\omega R_{12} \ll c$ и, как видно из формулы (11), происходит смещение резонанса по сравнению с частотой перехода ω_{0j} . Расстояние R_{12} в рассматриваемом численном примере выбирается таким

образом, чтобы частота размерного резонанса была близка к частоте перехода ω_{0j} . Коэффициент усиления света, взаимодействующего с атомным кластером, определим как отношение

$$q_0 = \frac{T'_2}{T_1}, \quad (18)$$

где T_1 – ширина на половине высоты дисперсионной зависимости $\text{Im} \alpha_{\text{eff}}^y$. Как видно из рис.1, T_1 значительно меньше T'_2 (приблизительно в 20 раз), что указывает на эффект гигантского усиления света в атомном кластере, состоящем из двух одинаковых атомов. Для сравнения заметим, что отношение интенсивности света I_{SR} в результате сверхизлучения в двухуровневой системе, где атомы взаимодействуют через общее поле излучения, к интенсивности спонтанного излучения изолированного атома I_0 равно [9]

$$\frac{I_{SR}}{I_0} = 4. \quad (19)$$

На рис.2 представлена дисперсионная зависимость безразмерной интенсивности электрического

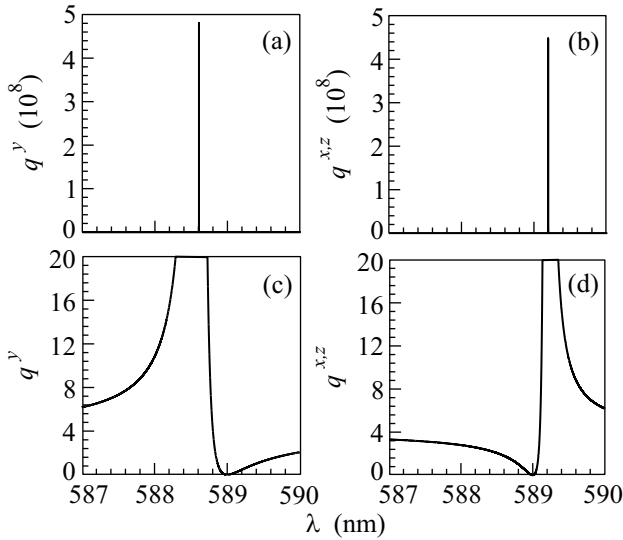


Рис. 2. Безразмерная интенсивность электрического дипольного излучения Na-Na димера как функция длины волны внешнего оптического излучения λ : (a) $q^y(\lambda)$ в обычном масштабе, (b) $q^{x,z}(\lambda)$ в обычном масштабе, (c) $q^y(\lambda)$ в усеченном масштабе, (d) $q^{x,z}(\lambda)$ в усеченном масштабе

дипольного излучения двухатомного кластера

$$q^y = \frac{4|\alpha_{\text{eff}}^y|^2}{|\alpha|^2}, \quad (20)$$

указывающая на значительное увеличение дипольного излучения вблизи резонансной частоты ω_0 по сравнению с дипольным излучением изолированного атома. Аналогичные дисперсионные зависимости имеют величины q и q_0 для эффективной поляризуемости α_{eff}^y , соответствующей поляризации света, перпендикулярной оси двухатомного кластера.

Соотношения (5) позволяют определить отношение амплитуды действующего поля в месте расположения атома кластера к амплитуде внешнего поля. Так, для y -компонент полей имеем следующее равенство

$$\frac{E_{01}^y}{E_{0l}^y} = \frac{|\alpha_{\text{eff}}^y|}{|\alpha|}. \quad (21)$$

Максимального значения квантовая поляризуемость α изолированного атома достигает при $\omega = \omega_0$. В этом случае $\text{Re } \alpha = 0$, $\text{Im } \alpha = 1.5c^3/\omega_0^3$. Для натрия $\text{Im } \alpha = 1.2 \cdot 10^{-15} \text{ см}^3$ на частоте перехода $\omega_0 = 0.3198 \cdot 10^{16} \text{ рад/с}$. Максимального значения эффективная поляризуемость α_{eff}^y достигает на частоте оптического размерного резонанса

$$\omega_s^y = \omega_{0j} - \frac{2|\mathbf{d}_{0j}|^2}{\hbar} \text{Re } A_R^y, \quad (22)$$

тогда для волнового числа k_0 имеем уравнение

$$k_0 = \frac{\omega}{c} = \frac{\omega_s^y}{c} = \frac{\omega_{0j}}{c} - \frac{2|\mathbf{d}_{0j}|^2}{\hbar c} \text{Re } A_R^y.$$

Подставляя выражение для $\text{Re } A_R^y$, получаем трансцендентное уравнение

$$\omega = \omega_{0j} + \frac{4w|\mathbf{d}_{0j}|^2}{\hbar R_{12}^3} \left(\cos \frac{\omega R_{12}}{c} + \frac{\omega R_{12}}{c} \sin \frac{\omega R_{12}}{c} \right).$$

Решая численными методами последнее уравнение для случая, когда расстояние между атомами Na равно $R_{12} = 1.8 \cdot 10^{-7} \text{ см}$, дипольный момент квантового перехода $|\mathbf{d}_0| = 2.56 \cdot 10^{-18} \text{ ед. СГСЭ}$, частота квантового перехода $\omega_0 = 0.3198 \cdot 10^{16} \text{ рад/с}$, $w = 1/2$, получаем значение волнового числа $k_0 = 106746.6 \text{ см}^{-1}$ и соответствующее значение длины волны $\lambda \approx 588.6 \text{ нм}$. На частоте оптического размерного резонанса $\text{Re } \alpha_{\text{eff}}^y = 0$, а

$$\text{Im } \alpha_{\text{eff}}^y = \frac{3}{2} \frac{c^3}{\omega_0^3 - (\omega_s^y)^3} \gg \text{Im } \alpha. \quad (23)$$

Таким образом, действующие (микроскопические) поля значительно превышают внешнее поле, облучающее кластер. В данной статье рассмотрение приведено в линейном приближении, когда $T_1 |\mathbf{E}_0|^2 \text{Im } \alpha \ll \hbar$, что позволяет рассматривать атомы кластера как линейные диполи, эффективная поляризуемость которых не зависит от поля \mathbf{E}_0 . Как видно из (23), в кластере могут быть достигнуты очень большие значения действующего поля \mathbf{E}_0 . В этом случае эффективные поляризуемости будут зависеть нелинейным образом от поля \mathbf{E}_0 , что требует специального рассмотрения.

Оценим квантовый выход Q системы атомных кластеров как отношение интенсивности дипольного излучения кластеров к интенсивности внешнего излучения:

$$Q = \frac{32\pi}{3} \frac{\omega^4}{c^4} \frac{|\alpha_{\text{eff}}^y|^2}{\pi a^2} N'_0, \quad (24)$$

где N'_0 – число атомных кластеров, a – радиус пучка внешнего оптического излучения. Если вместо α_{eff}^y в этой формуле вставить поляризуемость α изолированного атома, то получим квантовый выход Q_d системы N'_0 дипольно излучающих атомов. Учитывая (23), получим, что квантовый выход системы кластеров значительно превосходит квантовый выход системы дипольно излучающих изолированных атомов, поскольку оценка отношения

$$\frac{Q}{Q_d} \approx \left[1 - \left(1 - \frac{2|\mathbf{d}_{0j}|^2}{\hbar \omega_0 R_{12}^3} \right)^3 \right]^{-1} \quad (25)$$

при частоте перехода $\omega_0 = 0.3198 \cdot 10^{16}$ рад/с, значении модуля дипольного момента квантового перехода $|\mathbf{d}_{0j}| = 6.236 \cdot 10^{-18}$ ед. СГСЭ и расстоянии между атомами в димере $R_{12} = 1.2 \cdot 10^{-7}$ см дает увеличение квантового выхода Q приблизительно в 13 раз по сравнению с Q_d .

Рассмотрим теперь эффект гигантского усиления света в атомном кластере (например, Na_{21}), в котором атомы расположены в виде трехмерной “ромашки”. Все 20 атомов кластера находятся на одинаковом расстоянии R от центрального атома 1, то есть на сферической поверхности радиуса R . Этот кластер представляется в виде трех слоев, средний из которых изображен на рис.3. Верхний и нижний слои

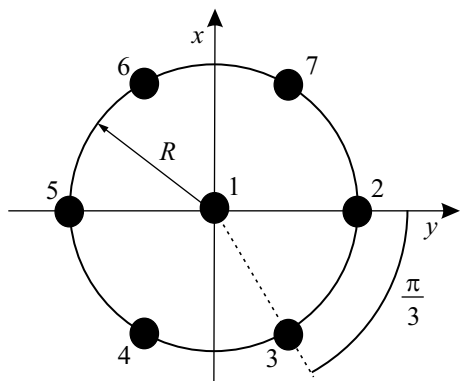


Рис.3. Расположение атомов в среднем слое атомного кластера в форме “ромашки”

повернуты относительно среднего слоя на $\pi/6$. Пусть индуцированные дипольные моменты атомов кластера направлены вдоль оси y . Тогда локальное электрическое поле в месте расположения атома 1 определим с помощью факторов

$$\begin{aligned} s_1 &= - \sum_{j=2}^{21} \frac{x_j^2 - 2y_j^2 + z_j^2}{R_j^5} \exp\left(i\frac{\omega}{c}R_j\right), \\ s_2 &= i\frac{\omega}{c} \sum_{j=2}^{21} \frac{x_j^2 - 2y_j^2 + z_j^2}{R_j^4} \exp\left(i\frac{\omega}{c}R_j\right), \\ s_3 &= \frac{\omega^2}{c^2} \sum_{j=2}^{21} \frac{x_j^2 + z_j^2}{R_j^3} \exp\left(i\frac{\omega}{c}R_j\right). \end{aligned} \quad (26)$$

Вычисление этих факторов показывает, что

$$\begin{aligned} s_1 &= -\frac{6.5}{R^3} \exp\left(i\frac{\omega}{c}R\right), \\ s_2 &= i\frac{\omega}{c} \frac{6.5}{R^2} \exp\left(i\frac{\omega}{c}R\right), \\ s_3 &= \frac{\omega^2}{c^2} \frac{15.6875}{R} \exp\left(i\frac{\omega}{c}R\right). \end{aligned} \quad (27)$$

Заметим, что численные значения факторов (26) сильно зависят от структуры атомного кластера, а также от местоположения атома-наблюдателя. Так, при кубической симметрии в расположении атомов $s_1 = s_2 = 0$. Если атом-наблюдатель находится не в центре сферы, а на ее поверхности, то значения факторов (26) приблизительно в шесть раз меньше значений (27).

Эффективную поляризуемость атома 1 в центре кластера представим как

$$\alpha_{\text{eff}}^y = \frac{\alpha}{1 + (s_1 + s_2 + s_3)w\alpha}, \quad (28)$$

где, как и в формуле (9), учтена начальная инверсия w атома. Максимального значения эффективная поляризуемость достигнет, если действительная и мнимая части знаменателя в (28) стремятся к нулю. В результате получим два уравнения, решение которых позволяет определить условия обнаружения эффекта гигантского усиления света. Одно из этих условий имеет вид

$$\frac{\omega_0^3}{\omega^3} = 40.584w. \quad (29)$$

При частоте внешнего оптического излучения ω , удовлетворяющей этому условию, происходит полная компенсация радиационного распада центрального атома, благодаря запаздывающему взаимодействию атомов в кластере. При такой частоте, значительно отличающейся от частоты перехода ω_0 , можно вычислить радиус атомного кластера R , при котором α_{eff}^y достигает максимального значения, и интенсивность электрического дипольного излучения центрального атома будет в $10^3 \div 10^8$ раз превышать интенсивность излучения изолированного атома натрия. Это значение определяется как

$$R = \left(\frac{6.5w2|\mathbf{d}_{0j}|^2}{\hbar\omega_0 \left(1 - (40.584w)^{-1/3}\right)} \right)^{\frac{1}{3}}. \quad (30)$$

Частота, определяемая равенством (29), соответствует точке перегиба дисперсионной зависимости $\text{Im} \alpha_{\text{eff}}^y$, разделяющей области положительной и отрицательной дисперсии.

Итак, в данной статье показано, что переизлучение атомным кластером внешнего излучения может происходить со значительно большей интенсивностью на частоте, близкой к частоте перехода изолированного атома в пределах его естественной ширины. Благодаря запаздывающему взаимодействию атомов, в кластере происходит трансформация естественной ширины атомов в кластере. Образуются области положительной и отрицательной дисперсии, и

естественная ширина линии атомов в кластере значительно уменьшается. Это означает, что в атомных кластерах возникает эффект гигантского усиления света, благодаря когерентным осцилляциям атомов в кластере. Для экспериментального обнаружения этого эффекта необходимо подготовить кластер с помощью оптической накачки, возбуждающей атомы в состоянии с инверсией $w_0 = 1/2$. Далее с помощью стационарного оптического излучения, интенсивность которого невелика, в атомном кластере возбуждаются квантовые переходы в стационарном режиме, когда релаксационные процессы компенсируются процессом индуцирования локальных электрических дипольных моментов. При этом межатомное расстояние в кластере выбирается таким образом, чтобы частоты размерных резонансов мало отличались от частоты перехода ω_0 в спектре изолированных атомов. Система таких кластеров может быть интенсивным светоизлучателем с большим квантовым выходом.

Как показано в данной статье, оптические свойства атомных кластеров, линейные размеры которых значительно меньше длины волны оптического излучения, определяются запаздывающим взаимодействием атомов. Казалось бы, что при выполнении условия $\omega R_{12} \ll c$ нам достаточно учитывать во внутреннем поле лишь кулоновское взаимодействие, пропорциональное R_{12}^{-3} . Однако, как показано в данной статье, для трансформации естественного уширения атомов в кластере необходимо учитывать кулоновское и запаздывающее взаимодействия атомов, благодаря которым получен фактор A_R в виде (13).

С нашей точки зрения, при компьютерном моделировании атомных кластеров следует применять полный оператор взаимодействия [10], где содержатся члены, отвечающие за кулоновское и запаздывающее взаимодействия атомов, учитывая их диэлектрические и магнитные свойства. Так, в работе [11] было показано, что атомный кластер из атомов золота обладает ферромагнитными свойствами, хотя массивное золото является диамагнетиком.

1. J. Zheng, C. Zhang, R. M. Dickson. Phys. Rev. Lett. **93**, 077402 (2004).
2. J. I. Gonzalez, T.-H. Lee, M. D. Barnes et al., Phys. Rev. Lett. **93**, 147402 (2004).
3. *Гигантское комбинационное рассеяние*, сб. статей под редакцией Р. Ченга и Т. Фуртака, М.: Мир, 1984.
4. О. Н. Гадомский, А. С. Куницын. Ж. Прикладной спектроскопии **67**, 777 (2000).
5. О. Н. Гадомский, А. С. Куницын, Оптика и спектроскопия **100**, 219 (2006).
6. О. Н. Гадомский, А. Г. Глухов, ЖЭТФ **130**, 31 (2006).
7. В. С. Горелик, О. Н. Гадомский, А. С. Куницын, Письма в ЖЭТФ **80**, 179 (2004).
8. О. Н. Гадомский, А. Г. Глухов, Письма в ЖЭТФ **82**, 63 (2005).
9. Л. Аллен, Дж. Эберли, *Оптический резонанс и двухуровневые атомы*, М.: Мир, 1978.
10. О. Н. Гадомский, К. К. Алтуни, ЖЭТФ **114**, 1555 (1998).
11. Y. Yamamoto, T. Miura, M. Suzuki et al., Phys. Rev. Lett. **93**, 116801 (2004).