Письма в ЖЭТФ, том 74, вып. 5, с. 283 – 286

Обменное взаимодействие изинговского типа для оптических двухуровневых систем

А. Р. Кессель[1], *И. С. Донская*

Казанский физико-технический институт КНЦ РАН, Казань, Россия

Поступила в редакцию 13 июня 2001 г.

После переработки 8 августа 2001 г.

Показано, что косвенное взаимодействие псевдоспинов двухуровневой оптической системы через поле излучения содержит энергетические составляющие псевдоспинов в форме изинговского обменного взаимодействия. Обсуждены условия, при которых это взаимодействие может проявиться в оптических спектрах.

PACS: 42.50.-p

В оптике часто имеет место ситуация, когда оптические переходы возбуждаются между определенной парой уровней энергии атома (обычно это основной, E_g, и один из возбужденных, E_e, уровней энергии), а все остальные уровни в физических процессах не участвуют. Удобное описание таких ситуаций дает использование понятия ДУС (двухуровневая система) и представления псевдоспина: изучаемая пара уровней энергии атома задается как собственные значения и состояния некоторого гамильтониана:

$$H_S^j = \hbar\omega_0 \widehat{S}^Z, \quad \hbar\omega_0 = E_e - E_g, \tag{1}$$

имеющего форму оператора зеемановской энергии для частицы с эффективным псевдоспином $S_j = \frac{1}{2}$ [1]. Считалось, что взаимодействие между ДУС'ами должно иметь форму $U_{jk}^x S_j^x S_k^x + U_{jk}^y S_j^y S_k^y$, поскольку электрический дипольный момент перехода в пространстве собственных состояний уровней E_g и E_e имеет только недиагональные матричные элементы. Однако это справедливо только в дипольном приближении. Ниже показывается, что при учете электрического квадрупольного взаимодействия [2]

$$V_2 = -\frac{e}{2c}\sum_{j=1}^{N}\sum_{\alpha,\beta} r_{\alpha j} r_{\beta j} \frac{\partial}{\partial R_{\alpha j}} \frac{\partial A_\beta(\mathbf{R}_j, t)}{\partial t} \tag{2}$$

в гамильтониане Паули косвенное взаимодействие содержит "энергетические" компоненты псевдоспина S_j^z. (Здесь $R_{\alpha j}$ и $r_{\alpha j}$ есть α-компоненты радиус-векторов ядра j и элемента электронной плотности оптической оболочки атома j, $A_\beta(\mathbf{R}_j, t)$ есть β-компонента вектора-потенциала поля излучения в представлении взаимодействия.)

Структуру гамильтониана двух подсистем в задаче о косвенном взаимодействии можно в общем виде представить в форме

$$H = H_0 + V_{sf}, \quad H_0 = H_S + H_f, \tag{3}$$

где H_S есть гамильтониан динамической подсистемы, состоящей из невзаимодействующих между собой частиц, H_f – гамильтониан поля-переносчика взаимодействия, V_{sf} – оператор взаимодействия между частицами двух подсистем.

Методика расчета косвенных взаимодействий [3, 4] состоит из двух этапов и строится на предположении, что для матричных элементов операторов выполняется неравенство

$$|V_{sf}| \ll |H_0|.$$

Первый этап – это переход к новому представлению с помощью унитарного преобразования $U = \exp\{-L\}$, где L – антиэрмитов оператор, удовлетворяющий условию

$$V_{sf} + [H_0, L] = 0. \tag{4}$$

В результате этого в новом представлении гамильтониан H приобретает форму

$$H \to \widetilde{H} = H_S + H_f + \frac{1}{2}[V_{sf}, L] + O(V_{sf}^3), \tag{5}$$

то есть теряет линейные по V_{sf} слагаемые. Решением операторного уравнения (3) будет

$$L = \frac{1}{i_\hbar}\lim_{\epsilon\to 0}\int\limits_{-\infty}^{0} dt\, e^{\epsilon t} V_{sf}(t), \tag{6}$$

$$V_{sf}(t) = \exp\{i(H_S + H_f)t/\hbar\} V_{sf} \exp\{-i(H_S + H_f)t/\hbar\}.$$

---
[1] e-mail: kessel@dionis.kfti.knc.ru

Таким образом, генератор унитарного линейного преобразования L имеет порядок величины $L \sim \sim |V_{sf}/|H_0|$.

Второй этап заключается в усреднении выражения (4) для $\widetilde{H}$ по состояниям поля-переносчика взаимодействия, так что член второго порядка

$$W = \frac{1}{2}\langle V_{sf}, L]\rangle \tag{7}$$

теории возмущений в разложении (3) перестает зависеть от переменных электромагнитного поля, но сохраняет зависимость от псевдоспиновых операторов различных частиц и вследствие этого приобретает смысл оператора их косвенного взаимодействия.

Гамильтониан Паули для атома в электромагнитном поле представим в форме

$$H = H_0 + V_1 + V_2, \quad H_0 = H_{0a} + H_{0ph}. \tag{8}$$

Здесь H_{0a} – гамильтониан изолированного атома, вместо него ниже будет использоваться его проекция (1) на подпространство состояний ДУС, H_{0ph} – гамильтониан поля излучения и

$$V_1 = -\sum_j (\mathbf{d}_j \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}_j, t)), \quad \mathbf{E}(\mathbf{R}_j, t) = -\frac{1}{c}\frac{\partial \mathbf{A}(\mathbf{R}_j, t)}{\partial t}, \tag{9}$$

где $\mathbf{d}_j = e\mathbf{r}_j$ – электрический дипольный момент перехода $E_g \leftrightarrow E_e$ атома j. Оператор V_2 дается выражением (2). В последующем расчете роль операторов H_s, H_f и V_{sf} (3) будут играть операторы (1), H_{0ph} и V_2, соответственно, причем в представлении вторичного квантования операторы H_{0ph} V_2 имеют вид

$$H_{0ph} = \hbar \sum_{k\mu} \omega_k \left(a^+_{k\mu} a_{k\mu} + \frac{1}{2}\right), \tag{10}$$

$$V_2(t) = -\frac{e}{2}\sqrt{\frac{2\pi\hbar}{V}} \sum_i \sum_{\alpha,\beta} r_{\alpha j} r_{\beta j} \times$$

$$\times \sum_{k,\mu} G^{\alpha\beta}_{k\mu}(\mathbf{R}_j)[a_{k\beta}(t) - a^+_{-k\mu}(t)], \tag{11}$$

$$G^{\alpha\beta}_{k\mu}(\mathbf{R}_j) = k^\alpha e^\alpha_{k\mu} \sqrt{\omega_k} e^{i\mathbf{k}\mathbf{R}_j},$$

где $a^+_{k\mu}(t)$, $a_{k\mu}(t)$ – операторы рождения и уничтожения фотона с импульсом $\hbar\mathbf{k}$, поляризацией μ с вектором поляризации $\mathbf{e}_{k\mu}$ [5, 6].

Используя операторы (1), (10) и (11) в формализме, указанном выше, можно получить следующее выражение для оператора косвенного взаимодействия:

$$W = \hbar \sum_{ij} U^z_{ij} S^z_i S^z_j. \tag{12}$$

Отсюда следует, что связь ДУС с полем излучения посредством квадрупольного взаимодействия V_2 приводит к обменному взаимодействию изинговского типа.

Потенциал этого взаимодействия

$$U^z_{ij} = \frac{e^2(\rho_z - \rho_x)^2}{2\pi\hbar} \int_0^\infty k^4 \Big\{ \frac{1}{15} j_0(kP) P_0 \cos(\Theta_R) -$$

$$- \frac{1}{21} j_2(kP) P_2(\cos(\Theta_R)) -$$

$$- \frac{4}{35} j_4(kP) P_4(\cos(\Theta_R)) \Big\} dk, \tag{13}$$

где $\rho_\alpha = \langle\Psi_e|r^2_\alpha|\Psi_e\rangle - \langle\Psi_g|r^2_\alpha|\Psi_g\rangle$, $j_n(z)$ – сферические функции Бесселя, $P(\cos\Theta_R)$ – полином Лежандра, Θ_R – полярный угол между кристаллической осью z и вектором $\mathbf{R}_{ij} = \mathbf{R}_j - \mathbf{R}_i$, $R = |R_{ij}|$, получен посредством от суммирования к интегрированию по волновым векторам фотонов.

Дальнейшее упрощение выражения (13) возможно осуществить, приняв во внимание следующие обстоятельства. Верхний предел интегрирования нельзя, к сожалению, распространить до бесконечности, поскольку при длинах волн, меньших размеров атома, атом не может рассматриваться как точечная частица, и выбранная выше форма взаимодействия V_{sf} вряд ли имеет место. В нашем случае уместно проводить интегрирование до $k_{\max} = 2\pi/r_a$, где r_a – атомный радиус. Далее, всегда имеет место условие $k_{\max}R > 1$, означающее, что расстояние между атомами больше размера атома. Это позволяет воспользоваться аппроксимацией

$$j_l(z) = \frac{1}{z}\cos\left(z - \frac{\pi}{2}(l+1)\right),$$

годной при больших значениях аргумента. В результате этих упрощений

$$U_{ij} = \hbar^{-1}\left[\frac{2\pi e(\rho_z - \rho_x)}{R}\right]^2 \times$$

$$\times \frac{\cos(2\pi R/r_a)}{2r_a^3} \cos^2\Theta_R \sin^2\Theta_R. \tag{14}$$

Таким образом, потенциал (14), осциллируя, убывает как R^{-2}_{ij}. Такое убывание связанно с уменьшением в точке R_j плотности фотонов, провзаимодействовавших с ДУС в точке R_i. Периодическая зависимость присуща многим косвенным взаимодействиям, наиболее известным из которых является взаимодействие ядерных спинов через электроны проводимости в металлах [4].

Для оценки величины параметров ρ_α в качестве состояния ψ_g и ψ_e выберем состояния $(1,0,0)$ и $(2,1,1)$ атома водорода (указаны тройки квантовых чисел (n,l,m)) [1]. Если использовать известные функции состояния $\psi_{2,1,1}$ и $\psi_{1,0,0}$ для водорода, то $\rho_x = \rho_y = 5r_{\text{Б}}^2$, $\rho_z = 11r_{\text{Б}}^2$, где $r_{\text{Б}}$ – Боровский радиус. Выбрав в качестве других параметров значения $r_a \sim 10^{-8}$ см и $R \sim 10^{-6}$ см, приходим к следующей величине интеграла изинговского обменного взаимодействия: $U(R_{ij}) \approx 10^{13}$ рад/с.

При неупорядоченном расположении ДУС в веществе взаимодействие W может привести к так называемому неоднородному уширению оптического перехода, поскольку на каждом атоме j порождает смещение резонансной частоты ω_0:

$$\Delta\omega_j = \sum_i U_{ij}^z \langle S_j^z \rangle,$$

которое является случайной величиной. Мерой ширины может служить среднеквадратичная величина $\Delta\omega_j$:

$$\overline{\Delta\omega_j} = \frac{\sqrt{2n}}{3\sqrt{35}} \left[\left(\frac{2\pi}{r_a}\right)^3 \frac{e^2(\rho_z - \rho_x)^2}{\hbar} \right] \times \\ \times \frac{\cos\{2\pi R_0/r_a\}}{\sqrt{\pi R_0}} \langle S_j^z \rangle, \qquad (15)$$

где $\langle S_j^z \rangle$ есть температурное среднее значение z-компоненты псевдоспина j при температуре эксперимента, которое, вообще говоря, можно считать не зависящим от точки к точке, R_0 – ближайшее возможное расстояние между ДУС и n – их концентрация [7]. При $n = 10^{17}\,\text{см}^{-3}$ получим $\Delta\omega_j \approx 10^{12}$ рад/с.

Естественная ширина линии спонтанного излучения определяется формулой $\gamma = 2d^2\omega_0^2/3\hbar c^3$ [8] и для оптических частот $\omega_0/2\pi \sim 3\cdot10^{14}$ Гц приблизительно равна $\gamma \approx 2\cdot10^5$ Гц, что существенно меньше рассчитанной здесь ширины.

Более интересное проявление изинговского обменного взаимодействия можно ожидать при упорядоченном расположении ДУС в кристаллической решетке. Как известно, в изинговском магнетике возникают дополнительные резонансные пики, если обменный интеграл больше естественной ширины линии [7]. В этих условиях величины $\Delta\omega_j$ перестают быть случайными, принимают несколько определенных значений и поэтому порождают дополнительные пики поглощения. Количество пиков зависит от числа обменно-связанных атомов. Например, в линейной изинговской системе при обменном взаимодействии ближайших соседей существуют три резонансные частоты: ω_0 и $\omega_0 \pm U_{ij}^z$.

Интегральные интенсивности этих линий проявляют характерную температурную зависимость; в частности, при приближении температуры к нулю все линии вымораживаются, за исключением одной, интенсивность которой растет. К сожалению, расстояние между оптическими уровнями энергии $E_e - E_g$ настолько велико, что практически всегда в равновесии реализуется предел нулевой температуры. Поэтому дополнительные пики следует искать в неравновесных условиях.

Эксперименты такого рода хорошо известны в магнитном резонансе. При воздействии на неоднородно уширенную линию ЭПР узкополосным сильным переменным полем последующее прохождение контура линии другим слабым полем выделяет широкий контур с "выжженной дырой" [9]. Форма линий ЭПР претерпевает сложные преобразования при восстановлении равновесия, по кинетике этого процесса судят о релаксационных свойствах изучаемого объекта.

Другой пример: при интенсивном узкочастотном насыщении однородно уширенной линии ЭПР ее контур сложным образом меняется вплоть до появления участков отрицательного поглощения. Сложная кинетика этого процесса, обязанная существованию резервуара магнитных диполь-дипольных взаимодействий, хорошо изучена экспериментальными методами [10].

Для экспериментального обнаружения изинговского обмененного взаимодействия ДУС следует вывести эту физическую систему из термодинамического равновесия, например, посредством π-импульса или интенсивного стационарного облучения с последующим прохождением спектра слабым лазерным лучом. В такой ситуации можно ожидать появления дополнительных пиков, проявляющих сложную кинетику.

Авторы признательны К.М.Салихову и В.Н.Лисину за обсуждение работы.

1. Л. Алан, Дж. Эберли, *Оптический резонанс и двухуровневые атомы*, М.: Мир, 1978. [L. Allen and J. H. Eberly, *Optical resonance and twolevel atoms*, New York, 1975].
2. Р.Лоудон, *Квантовая теория света*, М.: Мир, 1976. [R. Loudon, *The Quantum Theory of Light*, Clarendon Press Oxford, 1973].
3. H. Frohlich, Phys. Rev. **79**, 845 (1950).
4. M. A. Ruderman, C. Kittel, Phys. Rev. **96**, 99 (1954).
5. А. С. Давыдов, *Квантовая механика*, М.: Физматгиз, 1963.

6. У. Люиселл, *Излучение и шумы в квантовой электронике*, М.: Наука, 1972. [W. H. Loisell, *Quantum statistical properties of radiation*, John Wiley&Sons, New York, 1973].
7. А. Р. Кессель, Г. О. Берим, *Магнитный резонанс изинговских магнетиков*, М.: Наука, 1982; Г. О. Берим, М. М. Зарипов, А. Р. Кессель, ЖЭТФ **66**, 734 (1974); ФТТ **17**, 2622 (1975).
8. А. Н. Ораевский, УФН **164**, 415 (1994).
9. В. А. Ацаркин, *Динамическая поляризация ядер в твердых диэлектриках*, М.: Наука, 1980.
10. В. А. Ацаркин, М. И. Родак, УФН **107**, 3 (1972).