

ВРАЩЕНИЕ АТОМОВ В СВЕТЕ И МАГНИТНЫЙ РЕЗОНАНС

С.Г.Раутиан, А.Г.Рудавец

Установлено универсальное нелинейно-оптическое явление вращения моментов резонансных состояний атомов (молекул) в электромагнитной волне. Описывается структура нелинейного резонанса в магнитном поле, обусловленная вращением атомов.

Согласно классическим представлениям полные моменты атомов прецессируют в магнитном поле вокруг его направления. При небольших интенсивностях света прецессия обуславливает расщепление спектральных линий (эффект Зеемана). С другой стороны, в нелинейной спектроскопии, имеющей дело с интенсивным излучением, имеет место так называемое полевое расщепление спектральных линий. По аналогии с эффектом Зеемана можно утверждать, что полевое расщепление связано с движением моментов комбинирующих состояний в электромагнитной волне. Это движение присуще любому радиационному переходу и является следствием строгих законов сохранения и правил отбора.

Подобно тому, что воздействие света на постулатное движение атома следует из законов сохранения энергии и импульса в актах поглощения и испускания, движение моментов состояний вытекает из закона сохранения момента импульса. Вид классических траекторий движения моментов вырожденных атомных состояний, возбуждаемых светом, определяется поляризацией и спектральным составом этого света.

Ниже мы рассмотрим классическое движение моментов $J-J$ перехода в линейно поляризованном монохроматическом свете. Линейно поляризованный свет вызывает вращение моментов с угловой скоростью, определяемой его интенсивностью. Это происходит тогда, когда вынужденно испускается квант одной круговой поляризации, а поглощается другой. Поскольку интенсивности круговых компонент линейной поляризации равны, то вращение возможно в обоих направлениях вокруг электрического вектора E световой волны.

В магнитном поле на светоиндуцированное вращение моментов накладывается ларморовская прецессия. В итоге моменты начинают прецессировать вокруг равнодействующих, составленных из векторов E световой волны и напряженности внешнего магнитного поля.

Идею о вращении атомов в свете можно реализовать, используя адекватные понятия когерентных состояний группы вращения для квазиклассического представления тензорных операторов ¹. В этом представлении уравнения Шредингера для амплитуд вероятности состояний m - и n - перехода при точном резонансе ($\omega = \omega_{mn}$) в электромагнитном поле имеют вид

$$i \left(\frac{\gamma}{2} + \frac{\partial}{\partial t} \right) \begin{pmatrix} m \\ n \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \hat{\Delta} \hat{T}_z^{JJ} & G \hat{T}_x^{JJ} \\ G \hat{T}_x^{JJ} & \hat{\Delta} \hat{T}_z^{JJ} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} m \\ n \end{pmatrix}. \quad (1)$$

$$\Delta = \mu_0 H, \quad G = \mathcal{E} d_{mn} / (J(J+1)(2J+1))^{1/2}.$$

здесь H – внешнее магнитное поле, направленное по оси z ; μ_0 – магнитный момент оболочек mJ, nJ ; \mathcal{E} – электрическая компонента света, распространяющегося вдоль z и поляризованного вдоль x ; d_{mn} – приведенный матричный элемент дипольного момента перехода. Тензорная часть электродипольного и магнитного взаимодействий задается операторами

$$\hat{T}_z^{JJ} = J - \mu^* \partial / \partial \mu^*, \quad \hat{T}_x^{JJ} = J \mu^* + 0,5 (1 - \mu^{*2}) \partial / \partial \mu^* ;$$

$\mu^* = \text{tg} (\theta / 2) \exp (i \psi)$ – комплексная координата пространства, являющегося стереографической проекцией со сферы направлений². Начальные условия, отвечающие поглощению, суть

$$\begin{pmatrix} m \\ n \end{pmatrix}_{t=0} = \sum_{m=-J}^J \begin{pmatrix} J-M \\ 2J \end{pmatrix}^{1/2} \exp (i a_M) \mu^{*J-M} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad (2)$$

где $\begin{pmatrix} J-M \\ 2J \end{pmatrix}$ – биномиальный коэффициент, a_M – случайная фаза.

Уравнения (1) диагонализуются для состояний $\varphi_{\pm} = m \pm n$. Квазичастицы, отвечающие этим состояниям, различаются тем, что моменты их вращаются вокруг разных осей. Направления осей и скорость прецессии определяются из классических уравнений движения моментов квазичастиц

$$d \mu^* / dt = j_{\pm} (\mu^*), \quad j_{\pm} (\mu^*) = i (-\Delta \mu^* \pm G (1 - \mu^{*2}) / 2), \quad (3)$$

являющихся уравнениями характеристик (линий тока) волновых уравнений амплитуд состояний:

$$(\gamma / 2 + \partial / \partial t) \varphi_{\pm} = -j_{\pm} (\mu^*) \partial \varphi_{\pm} / \partial \mu^* + J (\partial j_{\pm} (\mu^*) / \partial \mu^*) \varphi_{\pm}. \quad (4)$$

Уравнения (3) на μ -плоскости эквивалентны уравнениям Блоха $\dot{\mathbf{n}} = [\hat{\mathbf{v}}_{\pm}, \mathbf{n}]$ для единичного вектора \mathbf{n} , направленного по среднему моменту и вращающегося вокруг осей $\hat{\mathbf{v}}_{\pm}$ с частотой $\nu = \sqrt{\Delta^2 + G^2}$. Оси прецессии \mathbf{v}_{\pm} момента квазичастиц коллинеарны равнодействующим векторов \mathbf{H} и $\pm \mathbf{E}$. Легко найти решения уравнений (4) с начальными условиями (2)

$$\varphi_{\pm} (\mu^*, t) = \pm \sum_{M=-J}^J \begin{pmatrix} J-M \\ 2J \end{pmatrix}^{1/2} (-1 - |a|^2)^{-J} (1 \pm a \mu^*)^{J-M} (\mu^* \mp a^*)^{J+M} e^{i a_M} e^{-\gamma t / 2},$$

$$a = -\Delta / G + i (\nu / G) \text{ctg} (\nu t / 2), \quad \nu = \sqrt{\Delta^2 + G^2}, \quad (5)$$

а из них – амплитуды состояний $m (\mu^*, t)$ и $n (\mu^*, t)$. Усредняя произведения волновых функций по ансамблю случайных фаз a_M , можно вычислить элементы матрицы плотности: распределения заселенностей ρ_{nn}, ρ_{mm} и поляризации ρ_{mn} по направлениям. Величина поглощаемой мощности определяется наведенной поляризацией

$$P(t) = \bar{n} \omega G \text{Im Sp} \left\{ \left(\frac{\partial}{\partial \mu^*} + \frac{\partial}{\partial \mu} \right) \rho_{mn} (\mu^*) \right\} = \frac{4 \bar{n} \omega J (J+1) G}{\pi} e^{-\gamma t} \times \\ \times \int \frac{d \text{Re} \mu d \text{Im} \mu}{(1 + |\mu|^2)^2} \text{Im} \left\{ \frac{(|a|^2 - 1) \text{Re} \mu + 2i \text{Im} a^*}{(|a|^2 + 1)(1 + |\mu|^2)} \left[\frac{|a|^2 - 1}{|a|^2 + 1} + \frac{4i \text{Im} (a^* \mu)}{(|a|^2 + 1)(1 + |\mu|^2)} \right]^{2J-1} \right\}. \quad (6)$$

Подынтегральная функция, характеризующая распределение поглощаемой мощности по направлениям, при больших J имеет два резких максимума (рис.1), пробегающих окружность $x^2 + y^2 = 1$ за время $\tau = \nu^{-1}$. Без магнитного поля пакеты локализируются вблизи

точек $x = \pm 1$ (линейно-поляризованный по оси x свет наводит x компоненту поляризации перехода). Крутизна локализованных пакетов растет с увеличением J . Контур магнитного резонанса $P(\Delta) = \int_0^\infty dt P(t)$ можно вычислить в M -представлении, выбрав ось квантования z по \hat{C} . Тогда амплитуды состояний имеют вид

$$\begin{pmatrix} m \\ n \end{pmatrix} = \sum_{M=-J}^J 0,5 \binom{J-M}{2J}^{1/2} \left[(-1)^M D_{MM'}^J(\psi, \theta, \psi) \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix} + (-1)^{-M'} D_{M',M}^J(-\psi, -\theta, -\psi) \begin{pmatrix} -1 \\ 1 \end{pmatrix} \right] e^{i a_M - \gamma t / 2} \quad (7)$$

Здесь $D_{MM'}^J(\psi, \theta, \psi)$ – матрица Вигнера, $\psi = \pi - \arctg[(\nu/G) \operatorname{ctg}(\nu t / 2)]$, $\theta = \arccos[(G^2 + \Delta^2 \cos \nu t) / \nu^2]$. Магнитное взаимодействие обуславливает переходы между соседними M -подуровнями вырожденных уровней, тем самым вызывая “частотную миграцию” наведенной светом поляризации. На классическом языке этот процесс отвечает фазовой модуляции осцилляций поляризации.

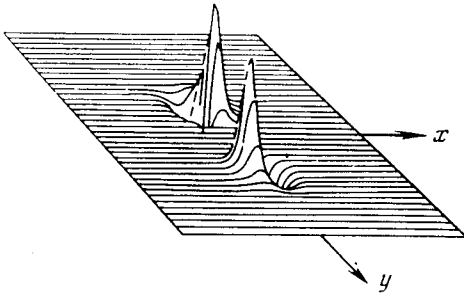


Рис. 1. Распределение поглощаемой мощности $J-J$ переходом: $J = 10$. $\Delta = G$, $t = \nu^{-1/2}$

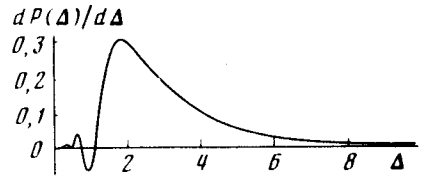


Рис. 2. Производная магнитного резонанса на переходе с моментом $J = 6$, как функция расщепления Δ , измеряемой в единицах γ

Когерентности уровней $\rho_{gg}(M, M')$ и перехода $\rho_{mn}(M, M')$ тоже представляются D -матрицами, но с иными аргументами. Поглощенная мощность компактно выражается через характер группы вращения

$$P(t) = \frac{\hbar \omega G^2}{\nu} \frac{\sin(\nu t)}{\sin(\omega/2)} e^{-\gamma t} \frac{d\chi^J(\omega)}{d\omega}, \quad \chi^J(\omega) = \frac{\sin((2J+1)\omega/2)}{\sin(\omega/2)},$$

$$\cos(\omega/2) = -(\Delta^2 + G^2 \cos(\nu t)) / \nu^2. \quad (8)$$

В итоге контур магнитного резонанса дается интегралом

$$P(\Delta) = \frac{\hbar \omega G^2}{\nu} \int_0^\infty dt e^{-\gamma t} \frac{J \sin(J+1)\omega - (J+1) \sin J \omega}{\sin^3(\omega/2)}$$

На рис. 2 приведен расчет¹⁾ величины $dP/d\Delta$ при насыщении $(G/\gamma)^2 = 0,05$. Отличия этого контура от дисперсионного возрастает с ростом насыщения. Тонкая структура контура насыщенного поглощения объясняется амплитудной и фазовой модуляцией поглощаемой мощности, обусловленной вращением моментов атомных состояний под действием света.

¹⁾Мы благодарны Л. Муратову за помощь в численных расчетах на ЭВМ.

Подобные структуры недавно наблюдались в экспериментальной работе ³, явившейся побудительным мотивом настоящей публикации.

Таким образом, идея о вращении атомов в свете имеет принципиальное значение для нелинейной спектроскопии и, в частности, в теории зеemanовских структур нелинейных резонансов для расчетов и интерпретации контуров нелинейного поглощения ^{4 5}.

Существование точных результатов в рассмотренной задаче обусловлено тем, что группа динамической симметрии взаимодействия совпадает с группой вращений $SU(2)$. Поэтому решения (7) — вращения начального состояния — образуются из конечномерного неприводимого представления динамической группы $SU(2)$. Для неточного резонанса или перехода с изменением J динамическая группа уже не сводится к простым вращениям. Однако в базе когерентных состояний группы вращений уравнение Шредингера можно разрешить, не задаваясь динамической симметрией. Классические траектории движения моментов в этих случаях также фигурируют в качестве характеристик.

В заключение считаем своим долгом выразить благодарность А.В.Гайнеру, Г.И.Сурдутовичу, И.И.Собельману, М.И.Штокману за плодотворные обсуждения.

Литература

1. Раутиан С.Г., Рудавец А.Г. ЖЭТФ, 1982, 82.
2. Переломов А.М. УФН, 1977, 123, 23.
3. Бадалян А.М., Гуськов К.И., Ковалевский В.И., Раутиан С.Г., Сапрыкин Э.Г., Смирнов Г.И. В сб.: Труды VII Вавиловской конференции по нелинейной оптике. Новосибирск, 1981 г.
4. Karplus R., Schwinger J. Phys. Rev. 1948, 73, 1020.
5. Раутиан С.Г., Смирнов Г.И., Шалагин А.М. Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул. Новосибирск, Наука. 1979.