

ЛОКАЛЬНОЕ ПОЛЕ И СКОРОСТЬ РАДИАЦИОННОЙ РЕЛАКСАЦИИ В ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ СРЕДЕ

Д. В. Кузнецов^{a,b,}, Вл. К. Рерих^a, М. Г. Гладуш^{b,c,**}*

^a ФГУП «ГНЦ РФ ТРИНИТИ»
142190, Троицк, Московская обл., Россия

^b Владимирский государственный университет
600000, Владимир, Россия

^c Институт спектроскопии Российской академии наук
142190, Троицк, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 24 мая 2010 г.
после переработки 5 апреля 2011 г.

Исследуется вопрос о влиянии макроскопических параметров вещества на оптические характеристики примесных частиц. Получено обобщенное управляющее уравнение для двухуровневых излучателей, образующих ансамбль оптических центров в прозрачной диэлектрической среде. В уравнении учитываются эффективные величины действующего поля накачки и скорости радиационной релаксации оптического центра. Развитый формализм представляет полностью микроскопический подход и основан на цепочке уравнений Боголюбова–Борна–Грина–Кирквуда–Ивона для редуцированных матриц плотности и корреляционных операторов материальных частиц и мод квантованного поля излучения. Используемый метод позволяет согласованным образом и без применения феноменологических процедур учитывать эффекты индивидуального и коллективного поведения излучателей, связанные с наличием промежуточной среды. Продемонстрировано согласие полученного аналитического выражения для эффективного времени жизни возбужденного состояния оптического центра с данными экспериментов.

1. ВВЕДЕНИЕ

Вопрос о влиянии окружающей среды на свойства излучающей системы сохраняет актуальность в течение достаточно продолжительного времени. Потенциальные возможности использования примесных оптических центров, к которым относятся атомы и ионы металлов, органические молекулы, квантовые точки, дефекты примесь–вакансия и т. д., требуют уточнения их основных характеристик. Одним из важнейших параметров оптического центра является скорость его радиационной релаксации — радиационная ширина линии излучения.

К настоящему времени хорошо известно, что скорость оптического перехода может существенным образом зависеть от структурных особенностей и локальных взаимодействий в ближнем окружении центра. Более того, во многих системах именно на-

личие среды делает возможным сам оптический переход. Однако при учете ее влияния следует различать роль «матрицы» как структурированного объекта и как единого общего «фона» для излучателей. Вклад последнего может быть оценен в первом приближении непосредственно из золотого правила Ферми, определяющего вероятность перехода. В силу изменения плотности конечных состояний поля и соответствующей энергии взаимодействия в среде скорость излучательной релаксации можно записать как $\Gamma \sim n\Gamma_0$, где Γ_0 — скорость релаксации в вакууме и n — показатель преломления [1, 2]. Более подробные оценки, следующие из обстоятельных теорий и предлагаемые для сравнения с экспериментальными данными, могут быть представлены в общем виде следующим образом:

$$\Gamma = n^{\phi} l^{\gamma}(n) \Gamma_0, \quad (1)$$

где $l(n)$ — коэффициент пропорциональности между локальным полем \mathbf{E}' , непосредственно действующим

*E-mail: dkuznet@yandex.ru

**E-mail: mglad@isan.troitsk.ru

щим на излучатель, и средним максвелловским полем \mathbf{E} в среде, т. е.

$$\mathbf{E}' = l(n)\mathbf{E}. \quad (2)$$

При этом комбинации значений показателей степени $\phi = \{0, 1\}$ и $\gamma = \{1, 2\}$ вместе с вариантами функциональной зависимости $l(n)$ определяют выводы конструирующихся на сегодняшний день подходов.

В данном направлении основными можно считать три результата. Поправка к скорости радиационной релаксации, получаемая в виде

$$\Gamma = n \left(\frac{n^2 + 2}{3} \right)^2 \Gamma_0, \quad (3)$$

носит название модели «виртуальной полости». В терминах выражения (1) здесь $\phi = 1$, $\gamma = 2$, а функция $l(n)$ представляет собой отношение локального поля Лоренца к максвелловскому полю [3].

Эффективная величина (3) была получена в большом количестве работ с использованием различных формализмов и математических приемов. Одной из основополагающих работ признана поляритонная теория Кностера и Мукамеля [4], которая предлагает вывод управляющего уравнения для кооперативной системы примесных молекул в кристалле. Учет локального поля следует из структуры парных взаимодействий примесных центров посредством поляритонных мод и, в итоге, сводится к умножению дипольных моментов оптического перехода всех примесей на $l(n)$. Как следствие, диагональные элементы в операторе релаксации, описывающие индивидуальный распад в каждой примесной молекуле, приобретают множитель, в точности соответствующий формуле (3). Данный результат считается внутренне согласованным и служит аргументом в пользу справедливости многих феноменологических оценок, так как общеизвестно, что Γ_0 определяется квадратом дипольного момента.

В работах [1, 5–7] доказывается справедливость выражения (3) для единичного излучателя-примеси. В отличие от работы [4], здесь отправным моментом является тот факт, что, согласно золотому правилу Ферми, скорость релаксации квадратична по оператору электрического поля. Здесь авторы применяют результаты некоторых подходов к квантованию поля или вычисления соответствующих функций Грина в однородном диэлектрике и получают множитель n . Также для оператора поля феноменологически учитывается соотношение (2) с предпочтением поправки Лоренца. Последнее автоматически приводит к искомому выражению.

Вместе с тем существуют работы, где полевая природа квадрата величины $l(n)$ выводится из более детальных микроскопических представлений. Так, в работе [8] автор использовал модифицированное управляющее уравнение для матрицы плотности коллективной системы и решение уравнения Дайсона для запаздывающих функций Грина. В ходе вычисления гриновских функций была применена процедура исключения «нефизичного» взаимодействия излучателя с самим собой, что, по сути, эквивалентно наличию соотношения (2). В еще одном подходе [9] вывод формулы (3) основан на определении потока энергии от излучателя через вектор Пойнтинга с использованием результатов оригинальной микроскопической теории квантования поля излучения в диэлектрике.

Отдельного внимания заслуживает работа [10], в которой вычисление скорости спонтанного излучения основано на анализе функций Грина и матрицы рассеяния поля в кристаллической решетке с кубической симметрией. Данное исследование дало старт широко признанной впоследствии концепции о справедливости поправки (3) для излучателей, внедренных в среду. При этом для излучателей, замещающих атомы решетки, должно выполняться равенство

$$\Gamma = n \left(\frac{3n^2}{2n^2 + 1} \right)^2 \Gamma_0. \quad (4)$$

Данное выражение соответствует принятому в литературе определению модели «пустой полости», последовательно представленной в работе [2]. Данный результат был получен как следствие процедуры квантования поля в диэлектрике с учетом предположения о наличии малой пустой сферы вокруг излучателя. Как и в (3), здесь также $\phi = 1$, $\gamma = 2$, но $l(n)$ определяет другое значение локального поля, которое есть упрощенный вариант формулы Онзагера [11]. Позднее соотношение (4) также получалось методом гриновских функций, как, например, в работе [12].

Первой значимой попыткой учесть изменения скорости электродипольных переходов группы примесных частиц без применения результатов квантования излучения в диэлектрике и выводов макроскопических теорий были работы «классиков» изучения локального поля — Боудена и Креншоу [13, 14]. Атомы среды, излучатели и поле описывались квантово-механически с использованием формализма Гейзенберга для соответствующих операторов. Адиабатическое исключение операторов поля и атомов среды позволило записать систему уравне-

ний, определяющую эволюцию излучателя. Поправка, полученная в этом подходе, имеет вид

$$\Gamma = \left(\frac{n^2 + 2}{3} \right) \Gamma_0. \quad (5)$$

В силу специфики метода за ней закрепилось название «полностью микроскопической» модели. Здесь $\phi = 0$, $\gamma = 1$, а $l(n)$, как и в случае (3), соответствует полю Лоренца. Критики поправки (5) указывают на ее конфликт с золотым правилом Ферми, обеспечивающим как $\phi = 1$, так и $\gamma = 2$. Однако следует отметить, что последнее верно в предположении о корректности процедур квантования поля в диэлектрике и присваивания оператору поля свойства (2). Попытка показать совместимость результатов микроскопического операторного метода с выводами макроскопических теорий была сделана в работе [15]. Авторы приводят результат, соответствующий модели как виртуальной, так и пустой полости с точностью до второго слагаемого в разложении полученной ими поправки по степени восприимчивости среды.

Как уже отмечалось, все указанные модели (3)–(5) сравнивались с экспериментальными данными о зависимости времени жизни возбужденных состояний примесных центров от n [16–29]. Из литературы следует, что каждая модель находила свои экспериментальные подтверждения. Более того, для ряда зависимостей демонстрировалась очевидная несостоятельность конкурентов. При этом будет справедливым отметить, что большинство сравнений [17, 19, 21, 23–29] отдает предпочтение поправке (4).

В основном перечисленные выше работы были нацелены на уточнение скорости распада возбужденного центра в диэлектрике. При этом обсуждались вопросы о поглощении и дисперсии среды вокруг излучателя. Только в работах [4, 13, 14] предлагались уравнения для описания эволюции ансамблей активных примесей, содержащие различные параметры, определяемые характеристиками среды. Для изучения оптического отклика систем на внешнее излучение необходимо знать, какие поправки вносит наличие среды в механизм оптической накачки. Примером могут быть работы [30, 31], где рассматривается возможность управления характеристиками лазерного поля с помощью композитных материалов, создающих различные локальные поля. Однако операторный формализм [4] создавался для кристаллов, а блоховские уравнения в работе [14] содержат поправку (5). Обобщение системы уравнений Максвелла–Блоха в работе [31] было проведено феноменологически.

Целью настоящей работы является вывод обобщенного управляющего уравнения для двухуровневых излучателей, образующих ансамбль оптических центров в прозрачной диэлектрической среде. Получены выражения как для скорости радиационного распада, так и для эффективного поля. Данная задача решается с использованием цепочки уравнений Боголюбова–Борна–Грина–Кирквуда–Ивона (ББГКИ) для редуцированных матриц плотности и корреляционных операторов материальных частиц и мод квантованного поля излучения [32, 33]. Такой формализм представляет полностью микроскопический подход и должен учитывать эффекты индивидуального и коллективного поведения излучателей, а также наличие среды. Сравнение полученного выражения для скорости радиационного затухания с данными экспериментов может служить критерием применимости уравнения для описания процессов в реальных системах.

2. МОДЕЛЬ

Рассмотрим систему из двух типов материальных частиц в поле лазерного излучения. Частицы, обозначаемые в дальнейшем индексом « a », считаем невырожденными двухуровневыми «излучателями» с частотой оптических переходов, близкой к частоте лазера. Второй тип частиц обозначим индексом « b » и рассматриваем их в качестве образующих элементов прозрачной среды, заполняющей пространство между излучателями типа a . При этом частицы типа b , так же как и излучатели, описываются как двухуровневые атомы, но с частотой перехода, сильно отстроенной от частоты внешнего возмущения. Учет прочих нерезонансных переходов «среды» в рамках данной задачи несуществен. Рисунок 1 иллюстрирует выбранную модель, где ω_a и ω_b — частоты соответствующих переходов $|2\rangle_a \rightarrow |1\rangle_a$ и $|2\rangle_b \rightarrow |1\rangle_b$ такие, что $|\omega_b - \omega_0| \gg |\omega_a - \omega_0|$ относительно частоты лазера ω_0 . Кроме этого, концентрации соответствующих компонент должны удовлетворять условию $N_b \gg N_a$.

Далее предположим, что материальные частицы «неподвижны» и взаимодействуют друг с другом только посредством электромагнитного поля. Их взаимодействие с полем будем рассматривать в рамках электрического дипольного приближения. При этом отметим, что в следующих преобразованиях и выкладках до определенного момента воздержимся от использования приближения вращающейся волны [3]. Для обеспечения общности подхода

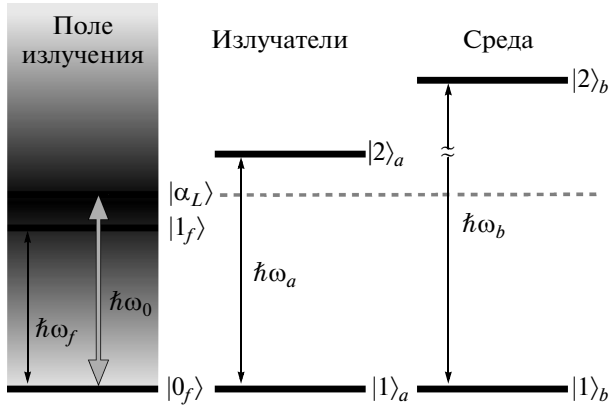


Рис. 1. Сорта частиц, входящие в модель ББГКИ

поле рассматривается как квантованное. Действие внешнего лазерного излучения учитывается определением начальных условий для полевых мод. Таким образом, нашей задачей является определение эволюции оговоренной трехкомпонентной системы. В наиболее полном виде это может быть достигнуто, если найти полную матрицу плотности системы $\rho(t)$, которая удовлетворяет уравнению фон Неймана

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [\hat{H}, \rho],$$

где $[\dots, \dots]$ обозначает коммутатор и при коммутации векторов-операторов следует понимать $[\hat{A}, \hat{B}] = \hat{A} \cdot \hat{B} - \hat{B} \cdot \hat{A}$.

Гамильтониан рассматриваемой системы имеет вид

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}.$$

Здесь \hat{H}_0 — гамильтониан свободных частиц,

$$\hat{H}_0 = \sum_a \hbar\omega_a \hat{\sigma}_a^+ \hat{\sigma}_a^- + \sum_b \hbar\omega_b \hat{\sigma}_b^+ \hat{\sigma}_b^- + \sum_f \hbar\omega_f \hat{a}_f^\dagger \hat{a}_f,$$

где первое и второе слагаемые представляют невозмущенные излучатели и среду с повышающими σ_s^+ и понижающими σ_s^- энергетическое состояние «атомными» операторами с $s = a, b$. Третье слагаемое описывает гамильтониан свободного квантованного электромагнитного поля с операторами рождения \hat{a}_f^\dagger и уничтожения \hat{a}_f фотона частоты ω_f с волновым вектором \mathbf{k} и вектором поляризации $\mathbf{e}(\mathbf{k}, \alpha)$, $\alpha = 1, 2$. Волновой вектор и вектор поляризации обозначены совокупным индексом $f \equiv \{\mathbf{k}, \alpha\}$.

Оператор V взаимодействия атомов с полем записывается через операторы дипольных моментов переходов $\hat{\mathbf{d}}_s$ и мод поля $\hat{\mathbf{E}}_f$ в виде

$$\hat{V} = \sum_a \sum_f \hat{V}_{af} + \sum_b \sum_f \hat{V}_{bf},$$

$$\hat{V}_{af} = -\hat{\mathbf{d}}_a \cdot \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}_a), \quad \hat{V}_{bf} = -\hat{\mathbf{d}}_b \cdot \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}_b).$$

В представлении взаимодействия уравнение для матрицы плотности

$$\rho = \exp\left(\frac{i\hat{H}_0 t}{\hbar}\right) \rho \exp\left(-\frac{i\hat{H}_0 t}{\hbar}\right)$$

имеет вид

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [\hat{V}, \rho]. \quad (6)$$

В операторе взаимодействия при этом появятся явные временные зависимости

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{d}}_a(t) &= \mathbf{d}_a \hat{\sigma}_a^- \exp(-i\omega_a t) + \text{H.c.}, \\ \hat{\mathbf{d}}_b(t) &= \mathbf{d}_b \hat{\sigma}_b^- \exp(-i\omega_b t) + \text{H.c.}, \end{aligned} \quad (7)$$

где \mathbf{d}_s — соответствующие матричные элементы дипольных переходов. Для оператора квантованного электрического поля в точке \mathbf{r} имеем следующее выражение:

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) &= i\sqrt{\frac{2\pi\hbar\omega_f}{V}} \hat{a}_f \mathbf{e}_f \times \\ &\times \exp(-i\omega_f t + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) + \text{H.c.}, \end{aligned} \quad (8)$$

где V — объем квантования.

В предположении, что в начальный момент времени все атомные частицы не взаимодействуют с полем и, соответственно, не скоррелированы, матрицу плотности $\rho(0)$ можно факторизовать и задать начальные условия для одночастичных матриц. При этом некоторые полевые моды можно определить как находящиеся в когерентном состоянии $\rho_L(0) = |\alpha_L\rangle\langle\alpha_L|$ со средним числом фотонов в моде $|\alpha_L|^2$. Для анализа уравнения фон Неймана вместе с начальными условиями воспользуемся формализмом ББГКИ для редуцированных матриц плотности.

3. ЦЕПОЧКА УРАВНЕНИЙ ББГКИ ДЛЯ ТРЕХКОМПОНЕНТНОЙ СИСТЕМЫ

Определим редуцированные матрицы плотности через полную матрицу плотности ρ путем взятия частичного следа:

$$\rho_{ABF} = \text{Tr}_{\bar{A}\bar{B}\bar{F}}(\rho), \quad \text{Tr}_{ABF} \rho_{ABF} = 1, \quad (9)$$

где \bar{A} , \bar{B} , \bar{F} — наборы частиц типов a и b и мод квантованного поля, по которым происходит усреднение (взятие следа). При этом A , B , F — остальные частицы в системе. Таким образом, комбинации

$A + \bar{A}$, $B + \bar{B}$, $F + \bar{F}$ составят полный набор всех видов частиц. Применяя процедуру взятия частичного следа к уравнению фон Неймана (6), получим цепочку зацепляющихся уравнений для одно-, двух-, трехчастичных и т. д. матриц плотности в представлении взаимодействия. Далее проведем кластерное разложение многочастичных матриц по следующему принципу:

$$\rho_{\alpha\beta} = \rho_{\alpha}\rho_{\beta} + g_{\alpha\beta},$$

$$\rho_{\alpha\beta\gamma} = \rho_{\alpha}\rho_{\beta}\rho_{\gamma} + g_{\alpha\beta}\rho_{\gamma} + g_{\alpha\gamma}\rho_{\beta} + g_{\gamma\beta}\rho_{\alpha} + g_{\alpha\beta\gamma},$$

где вводятся многочастичные корреляционные операторы $g_{\alpha\beta}$, $g_{\alpha\beta\gamma}$ и т. д., а индексы указывают на разные частицы системы. При этом для корреляций должно строго соблюдаться условие, что взятие полного или частичного следа от такого оператора равно нулю, т. е., например, $\text{Tr}_{\alpha}(g_{\alpha\beta}) = 0$. С учетом такого разложения уравнение для одночастичной матрицы плотности ρ_a запишется в виде

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho_a - \sum_f \left[\text{Tr}_f(\hat{V}_{af}\rho_f), \rho_a \right] = \sum_f \text{Tr}_f \left[\hat{V}_{af}, g_{af} \right]. \quad (10)$$

Это — основное уравнение, которое определяет эволюцию излучателя в нашей системе. Коммутатор в его левой части учитывает взаимодействие частицы с излучением. Правая часть уравнения отвечает за вклад корреляций атом–поле g_{af} в поведение ρ_a . Как будет показано ниже, именно в этой части учитываются спонтанное затухание, лэмбовский сдвиг, переходы, индуцируемые некогерентным излучением, и другие процессы. Целью всех дальнейших преобразований будет получение из (10) независимого уравнения для матрицы плотности произвольного излучателя a . Остальные необходимые уравнения цепочки имеют вид

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho_f - \left[\sum_a \text{Tr}_a(\hat{V}_{af}\rho_a) + \sum_b \text{Tr}_b(\hat{V}_{bf}\rho_b), \rho_f \right] = \sum_a \text{Tr}_a \left[\hat{V}_{af}, g_{af} \right] + \sum_b \text{Tr}_b \left[\hat{V}_{bf}, g_{bf} \right], \quad (11)$$

$$i\hbar \frac{d}{dt} g_{ab} - \sum_f \left[\text{Tr}_f(\hat{V}_{af}\rho_f) + \text{Tr}_f(\hat{V}_{bf}\rho_f), g_{ab} \right] = \sum_f \left[\text{Tr}_f(\hat{V}_{af}g_{bf}), \rho_a \right] + \sum_f \left[\text{Tr}_f(\hat{V}_{bf}g_{af}), \rho_b \right], \quad (12)$$

$$i\hbar \frac{d}{dt} g_{af} - \left[\sum_a \text{Tr}_a(\hat{V}_{af}\rho_a) + \sum_b \text{Tr}_b(\hat{V}_{bf}\rho_b) + \sum_f \text{Tr}_f(\hat{V}_{af}\rho_f), g_{af} \right] = \left[\hat{V}_{af} - \text{Tr}_a(\hat{V}_{af}\rho_a) - \text{Tr}_f(\hat{V}_{af}\rho_f), \rho_a\rho_f \right] + \sum_b \left[\text{Tr}_b(\hat{V}_{bf}g_{ab}), \rho_f \right]. \quad (13)$$

Сюда также необходимо добавить уравнения для матрицы плотности ρ_b и корреляционного оператора g_{bf} , которые получаются заменой индексов $a \leftrightarrow b$ в уравнениях (10) и (13). При этом отметим, что уравнения вида (10)–(12) записаны точно, без каких-либо предположений.

Таким образом, имеем группу полных уравнений, которые описывают эволюцию частиц системы и корреляции материальных частиц. Последние связывают одночастичные уравнения через соответствующие корреляции материальных компонент с фотонными модами g_{af} и g_{bf} . Однако теперь уже в этих уравнениях мы «оборвем» цепочки, ограничивая себя борновским приближением с частичным учетом поляризационных компонент. При этом будем считать, что двухчастичные корреляции $g_{ff'} = g_{aa'} = g_{bb'} = 0$. Такое приближение, правда, не позволяет рассматривать эффекты, связанные с многократным рассеянием излучения. Тем не менее это обеспечивает замкнутость системы уравнений при решении задачи о нахождении основных изменений в динамике радиационной релаксации излучателей. Исследование более полной цепочки уравнений и обсуждение связанных с этим проблем предлагается в работе [34]. В заключение особо отметим, что при построении и анализе уравнений (10)–(13) формально учитывается полное число частиц до конца всех преобразований. Такой подход обеспечивает правильную структуру уравнений типа (13). Благодаря точной записи слагаемых в первом коммутаторе его правой части, след по материальным или фотонным переменным будет всегда точно равен нулю: $\text{Tr}_a g_{af} = 0$ и $\text{Tr}_f g_{af} = 0$. Строгое выполнение этого условия является обязательным для корректного описания атомно-фотонных систем. Применительно к рассматриваемой задаче именно полная структура уравнений ББГКИ обеспечивает последовательный учет локального поля, действующего на частицу системы. Подробности данного аспекта также обсуждаются в работе [34].

4. ОСНОВНОЕ УПРАВЛЯЮЩЕЕ УРАВНЕНИЕ

Проведем процедуру адиабатического исключения уравнений (11), (12) из уравнения (10). Для этого определим удобные здесь полевые величины. Так, среднее значение поля может быть выражено через однофотонные матрицы плотности ρ_f следующим образом:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_f \text{Tr}_f(\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t)\rho_f(t)). \quad (14)$$

При этом для отрицательно- и положительно-частотных компонент оператора электрического поля $\hat{\mathbf{E}}_f^+$ и $\hat{\mathbf{E}}_f^-$ справедливы коммутационные соотношения [35]

$$\begin{aligned} \sum_f \left[\hat{E}_f^{\pm i}(\mathbf{r}, t), \hat{E}_f^j(\mathbf{r}', t') \right] = \\ = -i\hbar G^{\pm ij}(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t'), \end{aligned} \quad (15)$$

где G^{\pm} — опережающие и запаздывающие части тензора Грина электромагнитного поля в вакууме, $G = G^+ + G^-$:

$$\begin{aligned} G(\mathbf{r}, t) = \left(-\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} I + \nabla \otimes \nabla \right) \times \\ \times \frac{\delta(t - r/c) - \delta(t + r/c)}{r}, \end{aligned} \quad (16)$$

I — единичная матрица. Символ « \otimes » здесь и далее обозначает тензорное произведение векторов.

Далее, по аналогии с электрическим полем \mathbf{E} введем оператор $\hat{\mathbf{X}}_a$ векторного поля, описывающий влияние электромагнитного поля на излучатель посредством атомно-фотонной корреляции g_{af} :

$$\hat{\mathbf{X}}_a(\mathbf{r}, t) = \sum_f \text{Tr}_f(\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t)g_{af}(t)). \quad (17)$$

С учетом принятых определений уравнение (10) можно переписать в следующем виде:

$$\frac{d}{dt}\rho_a(t) = \frac{i}{\hbar} \left[\hat{\mathbf{d}}_a(t), \rho_a(t)\mathbf{E}(\mathbf{r}_a, t) + \hat{\mathbf{X}}_a(\mathbf{r}_a, t) \right]. \quad (18)$$

Соответствующие выражения для $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ и $\hat{\mathbf{X}}_a(\mathbf{r}, t)$ могут быть найдены непосредственно, если воспользоваться формальными решениями уравнений (11)–(13). При этом необходимо отметить, что при интегрировании уравнения (13) и подстановке его в (18), последнее слагаемое в левой части ($\sum_f \text{Tr}_f[(\hat{V}_{af}\rho_f), g_{af}]$) должно обеспечивать поправку к скорости радиационной релаксации излучателя, пропорциональную отношению квадрата

частоты Раби к квадрату частоты перехода [36, 37]. Поскольку частота перехода рассматривается в оптическом диапазоне, а частота Раби — в области радиочастот, такие поправки можно считать пренебрежимо малыми и вклад указанного слагаемого не учитывать. Аналогичные допущения можно также распространить на коммутатор в левой части уравнения (12). Тогда, используя (14), (15) и (17) с учетом последних замечаний, систему (11), (12) перепишем в виде интегралов

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}, t) + \int_0^t dt' \sum_a G(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, t - t') \mathbf{p}_a(t') + \\ + \int_0^t dt' \sum_b G(\mathbf{r} - \mathbf{r}_b, t - t') \mathbf{p}_b(t'), \end{aligned} \quad (19)$$

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{X}}_a(\mathbf{r}, t) = \int_0^t dt' \left(G^+(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, t - t') \rho_a(t') \hat{\mathbf{d}}_a(t') + \right. \\ \left. + G^-(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, t - t') \hat{\mathbf{d}}_a(t') \rho_a(t') \right) - \\ - \int_0^t dt' G(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, t - t') \mathbf{p}_a(t') \rho_a(t') + \\ + \int_0^t dt' \sum_b G(\mathbf{r} - \mathbf{r}_b, t - t') \mathbf{\Pi}_b(t') + \dots \end{aligned} \quad (20)$$

Здесь введены выражения для средних дипольных моментов материальных частиц,

$$\begin{aligned} \mathbf{p}_a(t) = \text{Tr}_a(\hat{\mathbf{d}}_a(t)\rho_a(t)), \\ \mathbf{p}_b(t) = \text{Tr}_b(\hat{\mathbf{d}}_b(t)\rho_b(t)), \end{aligned} \quad (21)$$

и для вклада элементарных поляризаций среды в корреляцию излучателя и поля,

$$\mathbf{\Pi}_b(t) = \text{Tr}_b(\hat{\mathbf{d}}_b(t)g_{ab}(t)). \quad (22)$$

Выражение (19) остается точным, а для корреляции $\hat{\mathbf{X}}_a(\mathbf{r}, t)$ в (20) приводятся лишь слагаемые, которые задействованы в дальнейшем. Для упрощения задачи мы не учли члены, содержащие коммутатор $[\hat{\mathbf{d}}_a(t), \rho_a(t)]$ и, следовательно, описывающие вынужденные переходы в излучателях, не обусловленные внешней накачкой. Их структура и вклад в управляющее уравнение обсуждаются в Приложении.

В уравнении (19) присутствует поле \mathbf{E}_0 , которое отвечает начальному значению $\rho_f(0)$ и в рассматриваемом случае представляет излучение лазера. Из структуры выражения (19) также следует,

что $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ удовлетворяет волновому уравнению в среде с макроскопической поляризацией

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) \equiv \mathbf{P}_a(\mathbf{r}, t) + \mathbf{P}_b(\mathbf{r}, t) = \sum_a \mathbf{p}_a \delta(\mathbf{r}_a - \mathbf{r}) + \sum_b \mathbf{p}_b \delta(\mathbf{r}_b - \mathbf{r}), \quad (23)$$

т. е.

$$\square_{r,t} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}(\mathbf{r}, t),$$

где на поле действует оператор Д'Аламбера:

$$\square_{r,t} \equiv -\Delta_r + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}. \quad (24)$$

В выражении (20) первые два слагаемых в правой части отвечают за распространение излучения от источника. Третье слагаемое, появившееся благодаря корректной записи уравнений ББГКИ, устраняет самовоздействие источника (см. разд. 5). В этом можно убедиться, если умножить (19) на $\rho_a(t)$ и сложить с (20) при $\rho_a(t' \rightarrow t)$. Тогда станет очевидно, что излучатель не вносит собственного вклада в действующее на него поле. Последнее слагаемое учитывает влияние атомов среды на распространение излучения.

В следующем разделе, с помощью уравнений (19), (20) и величин, связанных со средой, получим независимое уравнение для матрицы плотности излучателя.

5. ДЕЙСТВУЮЩЕЕ ПОЛЕ НАКАЧКИ И СКОРОСТЬ РАДИАЦИОННОЙ РЕЛАКСАЦИИ В СРЕДЕ

Первым шагом в определении действующего поля в уравнении (18) будет переход к «непрерывной среде». Для этого в выражении для поля (19) суммы по сортам частиц необходимо заменить соответствующими интегралами по координатам частиц \mathbf{r}_a и \mathbf{r}_b . При таком переходе к сплошной среде с координатой \mathbf{r} в окрестности атома a -типа ($|\mathbf{r} - \mathbf{r}_a| < R$, где R — радиус малой сферы, рис. 2) необходимо помнить, что в сумме по атомам b -типа слагаемое с $|\mathbf{r} - \mathbf{r}_a| = 0$ в аргументе функции отсутствует. Это приведет к «выкалыванию» дельта-области из полного объема $(V - \delta)$ при интегрировании атомов b -типа:

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 + \int_0^t dt' \sum_a G \mathbf{p}_a + \int_0^t dt' \int_{V-\delta} d\mathbf{r}_b G \mathbf{p}_b. \quad (25)$$

Как показано ниже в Приложении, с помощью цепочек уравнений ББГКИ можно выразить среднее зна-

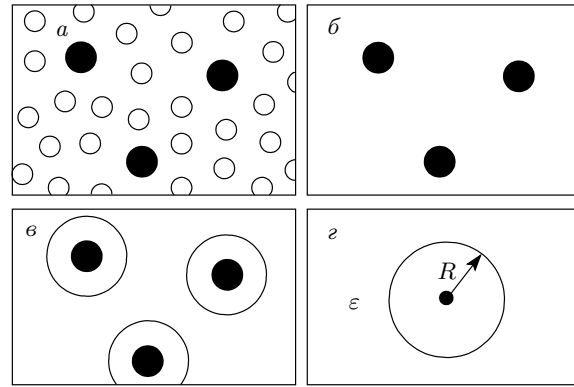


Рис. 2. Последовательность перехода от микроскопического описания среды и излучателей к макроскопическому описанию: a — набор излучателей (черные кружки) и атомов среды (белые кружки), используемый в исходном микроскопическом гамильтониане; суммирование по частицам учитывает точечный характер среды; b — переход от суммирования по точечным атомам среды к интегрированию по сплошной среде (белый фон); v — необходимое исключение сплошной среды в местах расположения излучателей; z — модель реальной полости исключения среды — излучатель окружен пустой сферой радиуса R , снаружи сферы сплошная среда с диэлектрической проницаемостью ε

чение дипольного момента \mathbf{p}_b через поляризуемость и поле:

$$\mathbf{p}_b(t) = \int_0^t dt' \alpha_b(t - t') \mathbf{E}(t'). \quad (26)$$

При этом фурье-образ поляризуемости имеет вид $\mathbf{p}_{\omega b} = \alpha_{\omega b} \mathbf{E}_{\omega}$. Поскольку частота внешнего лазерного поля далека от резонанса с частотой перехода частиц среды (b -типа), в диапазоне частот, близких к частоте внешнего лазерного поля, фурье-образ можно считать константой, $\alpha_{\omega b} = \text{const}$, подробнее см. (A.14) в Приложении.

Исключение атомов среды из уравнения поля (25) приведет к уравнению

$$\tilde{\square}_{r,t} \mathbf{E} = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\mathbf{P}_a - \mathbf{P}_b \theta(R - |\mathbf{r} - \mathbf{r}_a|)), \quad (27)$$

где введен волновой оператор

$$\tilde{\square}_{r,t} = -\Delta_r + \frac{\varepsilon}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}, \quad (28)$$

а $\varepsilon = 1 + 4\pi N_b \alpha_{\omega b}$ — диэлектрическая проницае-

мость. С учетом волнового оператора $\tilde{\square}_{r,t}$ запишем уравнение (27) в интегральном виде:

$$\mathbf{E} = \tilde{\mathbf{E}} + \int_0^t dt' \sum_a G_\varepsilon \mathbf{P}_a - \int_0^t dt' \int_{\delta} d\mathbf{r}_b G_\varepsilon \mathbf{P}_b, \quad (29)$$

где $\tilde{\mathbf{E}}$ подчиняется волновому уравнению:

$$\tilde{\square}_{r,t} \tilde{\mathbf{E}} = 0. \quad (30)$$

Таким образом, наличие сплошной среды в уравнении для \mathbf{E} отразилось в изменении функции Грина для распространения электромагнитного поля в вакууме на функцию Грина в среде G_ε .

Далее вычислим интеграл по малому δ -объему с центром в точке \mathbf{r}_a . Заметим, что интеграл по времени вместе с выражением (7) для дипольного момента приводит к фурье-образу функции Грина:

$$\int_0^t dt' G_\varepsilon(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - \tau) \mathbf{P}_b(\tau) = N_b \mathbf{d}_b \text{Tr}_b(\hat{\sigma}_b^- \rho_b) \times \\ \times \exp(-i\omega_b t) G_\varepsilon(\mathbf{r} - \mathbf{r}', \omega_b) + \text{H.c.} \quad (31)$$

Соответствующая функция Грина (фурье-образ) для распространения электромагнитного поля в среде имеет вид

$$G_\varepsilon(\mathbf{r}, \omega) = -\frac{4\pi}{3\varepsilon} \delta(\mathbf{r}) I + \\ + \frac{\omega^2}{c^2} [P(iqr) + Q(iqr) \mathbf{n} \otimes \mathbf{n}] \frac{e^{iqr}}{r}, \quad (32)$$

где введены обозначения

$$q = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon}, \quad \mathbf{n} = \frac{\mathbf{r}}{r}, \quad (33)$$

а функции имеют вид

$$P(z) = \left(1 - \frac{1}{z} + \frac{1}{z^2}\right), \quad Q(z) = -\left(1 - \frac{3}{z} + \frac{3}{z^2}\right).$$

При интегрировании фурье-образа функции Грина (32) по малой δ -области вклад в конечный интеграл дает только слагаемое $-4\pi\delta(\mathbf{r})/3\varepsilon$. Остальная часть функции Грина дает величину, пропорциональную отношению квадрата радиуса шара к длине волны дипольного перехода атома, R^2/λ^2 . Соответствующим выбором R этим вкладом части функции Грина можно пренебречь. В результате получим

$$\mathbf{E} = \tilde{\mathbf{E}} + \int_0^t dt' \sum_a G_\varepsilon \mathbf{P}_a + \frac{4\pi}{3\varepsilon} \mathbf{P}_b. \quad (34)$$

Подставив $\mathbf{P}_b = N_b \alpha_{\omega b} \mathbf{E}$ в последнее слагаемое и перенес его в левую часть равенства,

$$\mathbf{E} \left(1 - \frac{4\pi}{3\varepsilon} N_b \alpha_{\omega b}\right) = \tilde{\mathbf{E}} + \int_0^t dt' \sum_a G_\varepsilon \mathbf{P}_a, \quad (35)$$

окончательно получим

$$\mathbf{E} = l(\varepsilon) \left(\tilde{\mathbf{E}} + \int_0^t dt' \sum_a G_\varepsilon \mathbf{P}_a \right), \quad (36)$$

где поправка $l(\varepsilon)$ имеет вид

$$l(\varepsilon) = \frac{3\varepsilon}{2\varepsilon + 1}. \quad (37)$$

Аналогичная процедура исключения атомов среды проводится для функции $\hat{\mathbf{X}}_a$. В результате перехода к тензору Грина G_ε для распространения электромагнитного поля в среде система уравнений запишется в виде

$$\mathbf{E} = l(\varepsilon) \left(\tilde{\mathbf{E}} + \int_0^t dt' \sum_a G_\varepsilon \mathbf{P}_a \right), \quad (38) \\ \hat{\mathbf{X}}_a = l(\varepsilon) \int_0^t dt' \left(G_\varepsilon^+ \rho_a \hat{\mathbf{d}}_a + G_\varepsilon^- \hat{\mathbf{d}}_a \rho_a - G_\varepsilon \mathbf{P}_a \rho_a \right).$$

Отметим, что поправка $l(\varepsilon)$ одинакова как для электрического поля \mathbf{E} , так и для $\hat{\mathbf{X}}_a$. Остановимся подробнее на выражении $\hat{\mathbf{X}}_a + \rho_a \mathbf{E}$. Слагаемые $G_\varepsilon^+ \rho_a \hat{\mathbf{d}}_a + G_\varepsilon^- \hat{\mathbf{d}}_a \rho_a$ из выражения для $\hat{\mathbf{X}}_a$, подставленные в уравнение на ρ_a , останутся без изменений, а член $-G_\varepsilon \mathbf{P}_a \rho_a$ сократится с одним слагаемым из $\rho_a \mathbf{E}$, а именно:

$$l(\varepsilon) \int_0^t dt' G_\varepsilon(\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}_a, t - \tau) \mathbf{P}_a (\rho_a(t) - \rho_a(\tau)) = 0.$$

Тензор Грина в среде G_ε пропорционален δ -функции. Если $\mathbf{r} \rightarrow \mathbf{r}_a$, то $t' \rightarrow t$, а поскольку в представлении взаимодействия $\rho_a(t)$ является медленно меняющейся функцией времени, будет выполняться равенство $\rho_a(t) - \rho_a(t') = 0$. В результате происходит автоматическое исключение самовоздействия излучателя. Такое поведение системы является следствием внутренней согласованности цепочки уравнений

ББГКИ. В итоге решение системы (38) сведется к решению уравнения

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\rho_a = l(\varepsilon)\frac{i}{\hbar} \left[\hat{\mathbf{d}}_a, \int_0^t dt' \left(G_\varepsilon^+ \rho_a \hat{\mathbf{d}}_a + G_\varepsilon^- \hat{\mathbf{d}}_a \rho_a \right) \right] + \\ + l(\varepsilon)\frac{i}{\hbar} \left[\hat{\mathbf{d}}_a \cdot \left(\tilde{\mathbf{E}} + \int_0^t dt' \sum_{a' \neq a} G_\varepsilon \mathbf{P}_{a'} \right), \rho_a \right]. \end{aligned} \quad (39)$$

Первые два слагаемых из этого уравнения приводят к выражению для оператора радиационной релаксации. Для этого подставим в (39) явное выражение (7) для оператора дипольного момента $\hat{\mathbf{d}}_a$. Пренебрегая слагаемыми на удвоенных частотах, получим

$$\hat{\Gamma}_\varepsilon[\rho_a] = \frac{\Gamma_\varepsilon}{2} (\hat{\sigma}_a^+ \hat{\sigma}_a^- \rho_a - 2\hat{\sigma}_a^- \rho_a \hat{\sigma}_a^+ + \rho_a \hat{\sigma}_a^+ \hat{\sigma}_a^-). \quad (40)$$

Величина $\Gamma_\varepsilon = \text{Re}(\sqrt{\varepsilon}) \text{Re}(l(\varepsilon))\Gamma_a$ имеет смысл скорости радиационной релаксации в среде. Поскольку в уравнениях теперь присутствует функция Грина электромагнитного поля в среде G_ε , в выражении для скорости появляется коэффициент $\text{Re}(\sqrt{\varepsilon})$. В этом можно убедиться, непосредственно вычисляя значение новой константы

$$\Gamma_\varepsilon = \frac{2}{\hbar} \mathbf{d}_a \text{Im} (l(\varepsilon)G_\varepsilon^-(0, \omega_a)) \mathbf{d}_a^*. \quad (41)$$

При подстановке $\varepsilon = 1$ приходим к хорошо известному выражению

$$\Gamma_\varepsilon = \Gamma_a = \frac{4|\mathbf{d}_a|^2 \omega_a^3}{3\hbar c^3}. \quad (42)$$

Оставшиеся слагаемые в уравнении (39) образуют эффективное поле накачки \mathbf{E}' , действующее на излучатель. С учетом этого и выражения (40) основное управляющее уравнение для ρ_a имеет вид

$$\frac{d}{dt}\rho_a = \frac{i}{\hbar} [\hat{\mathbf{d}}_a \cdot \mathbf{E}', \rho_a] - \hat{\Gamma}_\varepsilon[\rho_a]. \quad (43)$$

Рассмотрим подробнее выражение для эффективного поля накачки

$$\mathbf{E}' = l(\varepsilon) \left(\tilde{\mathbf{E}} + \int_0^t dt' \sum_{a' \neq a} G_\varepsilon \mathbf{P}_{a'} \right). \quad (44)$$

Для однородно распределенных излучателей неполная сумма по излучателям сводится к интегралу по всему объему V за исключением малого δ -объема:

$$\sum_{a' \neq a} G_\varepsilon \mathbf{P}_{a'} = \int_V d\mathbf{r}_a G_\varepsilon \mathbf{P}_a - \int_\delta d\mathbf{r}_a G_\varepsilon \mathbf{P}_a. \quad (45)$$

Как и ранее, интеграл по времени приводит к фурье-образу функции Грина, а последующее интегрирование по малому объему δ — к

$$\int_0^t dt' \int_\delta d\mathbf{r}_a G_\varepsilon \mathbf{P}_a = -\frac{4\pi}{3\varepsilon} \mathbf{P}_a. \quad (46)$$

Интеграл по всему объему V вместе с $\tilde{\mathbf{E}}$ соответствует распространяющемуся полю $\bar{\mathbf{E}}$ в среде:

$$\bar{\mathbf{E}} = \tilde{\mathbf{E}} + \int_0^t dt' \int_V d\mathbf{r}_a G_\varepsilon \mathbf{P}_a, \quad (47)$$

или, в эквивалентной форме,

$$\tilde{\square}_{r,t} \bar{\mathbf{E}} = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}_a. \quad (48)$$

В результате окончательное выражение для эффективного поля накачки излучателя принимает вид

$$\mathbf{E}' = l(\varepsilon) \left(\bar{\mathbf{E}} + \frac{4\pi}{3\varepsilon} \mathbf{P}_a \right). \quad (49)$$

Перейдем от представления взаимодействия к представлению, связанному с отстройкой частоты дипольного перехода от частоты внешнего лазерного поля, $\Delta = \omega_a - \omega_0$:

$$\rho = \exp(-i\Delta \hat{\sigma}_a^+ \hat{\sigma}_a^- t) (\rho_a) \exp(i\Delta \hat{\sigma}_a^+ \hat{\sigma}_a^- t). \quad (50)$$

Далее считаем, что $\mathbf{d}_a = \mathbf{d}_a^*$, тогда в приближении вращающейся волны управляющее уравнение для излучателя в среде без поглощения ($\varepsilon = \varepsilon^*$) имеет вид

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\rho = i \left[-\Delta \hat{\sigma}_a^+ \hat{\sigma}_a^- + l(\varepsilon) \frac{\Omega}{2} (\hat{\sigma}_a^+ + \hat{\sigma}_a^-), \rho \right] + \\ + i \frac{l(\varepsilon)}{\varepsilon} \xi [\rho_{21} \hat{\sigma}_a^+ + \rho_{12} \hat{\sigma}_a^-, \rho] - \sqrt{\varepsilon} l(\varepsilon) \hat{\Gamma}_a[\rho], \end{aligned} \quad (51)$$

где введены частота Раби

$$\Omega(t) = \frac{\mathbf{d}_a \cdot \bar{\mathbf{E}}(t)}{\hbar}, \quad (52)$$

параметр частотного сдвига

$$\xi = \frac{4\pi N_a |\mathbf{d}_a|^2}{3\hbar} \quad (53)$$

и оператор радиационной релаксации

$$\hat{\Gamma}_a[\rho] = \frac{\Gamma_a}{2} (\hat{\sigma}_a^+ \hat{\sigma}_a^- \rho - 2\hat{\sigma}_a^- \rho \hat{\sigma}_a^+ + \rho \hat{\sigma}_a^+ \hat{\sigma}_a^-). \quad (54)$$

При наличии поглощения в среде необходимо учитывать мнимую часть диэлектрической проницаемости среды. В этом случае получим

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\rho = & i \left[-\Delta\hat{\sigma}_a^+\hat{\sigma}_a^- + l(\varepsilon)\frac{\Omega}{2}(\hat{\sigma}_a^+ + \hat{\sigma}_a^-), \rho \right] + \\ & + i \operatorname{Re} \left(\frac{l(\varepsilon)}{\varepsilon} \right) \xi [\rho_{21}\hat{\sigma}_a^+ + \rho_{12}\hat{\sigma}_a^-, \rho] - \\ & - \operatorname{Im} \left(\frac{l(\varepsilon)}{\varepsilon} \right) \xi [\rho_{21}\hat{\sigma}_a^+ + \rho_{12}\hat{\sigma}_a^-, \rho] - \\ & - \operatorname{Re}(\sqrt{\varepsilon}) \operatorname{Re}(l(\varepsilon))\hat{\Gamma}_a[\rho]. \end{aligned} \quad (55)$$

6. СРАВНЕНИЕ С ЭКСПЕРИМЕНТОМ

При сравнении теоретической кривой с экспериментальными данными во многих работах принята определенная процедура аппроксимирования точек кривой. Так, время жизни возбужденного состояния, выраженное через функциональную зависимость от коэффициента преломления среды n , имеет вид

$$\tau(n) = \frac{\tau_0}{n^\phi l^\gamma(n)}. \quad (56)$$

В этом случае процедура аппроксимации заключается в том, что подбирают такое значение τ_0 , чтобы теоретическая кривая $\tau(n)$ наилучшим образом описывала положение экспериментальных точек. Полученная нами аналитическая зависимость скорости радиационной релаксации $\Gamma_\varepsilon = \sqrt{\varepsilon}l(\varepsilon)\Gamma_0$ от диэлектрической проницаемости среды позволяет выразить время жизни возбужденного состояния от коэффициента преломления среды:

$$\tau(n) = \frac{\tau_0}{nl(n)}, \quad l(n) = \frac{3n^2}{2n^2 + 1}. \quad (57)$$

На рис. 3 представлено сравнение экспериментальных точек с полученной аналитической зависимостью в рамках описанной выше процедуры аппроксимации. Точки взяты из экспериментальных работ по измерению времени жизни возбужденных состояний ионов европия Eu^{3+} [21] и ионов тербия Tb^{3+} [25], внедренных в бинарное стекло $x\text{PbO} - (1-x)\text{V}_2\text{O}_5$. Путем изменения x менялось значение показателя преломления среды n . Экспериментальные данные также взяты из работы [22] по исследованию излучения квантовых точек теллурида кадмия CdTe и селенида кадмия CdSe в различных растворах (гексан, октан, циклогексан, хлороформ, толуол). Если рассматривать модель «пустой

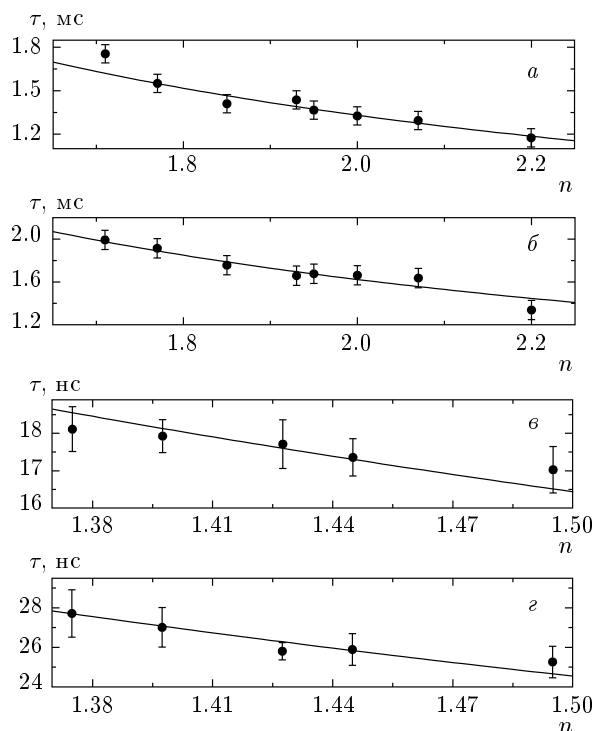


Рис. 3. Аппроксимация экспериментальных точек аналитической кривой: *a* — ионы европия Eu^{3+} [21]; *b* — ионы тербия Tb^{3+} [25]; *v* — квантовые точки CdTe [22]; *z* — квантовые точки CdSe [22]

полости» для указанных работ в рамках той же процедуры аппроксимации, то она будет лучше описывать поведение экспериментальных точек для ионов европия и тербия, а «полностью микроскопическая» модель наилучшим образом ложится на экспериментальные данные для квантовых точек теллурида и селенида кадмия. Полученный нами результат одинаково хорошо описывает как квантовые точки, так и ионы. Модель «виртуальной полости» проявляет наихудший результат в аппроксимации точек для указанных работ. Здесь следует отметить, что в литературе среди моделей виртуальной полости и пустой полости предпочтение отдается модели пустой полости. Хотя для экспериментальных данных в работе [20] имеется хорошее согласие с моделью виртуальной полости, позднее в работе [23] путем усложнения процедуры аппроксимации была показана возможность описания экспериментальных точек с помощью модели пустой полости. Также в этой работе продемонстрированы дополнительные способы аппроксимации для соответствия модели пустой полости с экспериментальными данными.

7. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе было проведено исследование влияния локального поля, создаваемого средой, на скорость радиационной релаксации возбужденного состояния излучателя. Первым важным результатом этого исследования стал самосогласованный вывод (*ab initio*) общей замкнутой системы уравнений (18)–(20), описывающей эволюции матрицы плотности ρ_a излучателя, эффективного среднего поля \mathbf{E} и корреляционного тензора $\hat{\mathbf{X}}_a$. Это удалось выполнить благодаря подходу, основанному на методе цепочки уравнений ББГКИ, адаптированному к решению задач оптики и спектроскопии. К успешной адаптации метода привел учет полного числа частиц на протяжении всей процедуры вывода цепочки уравнений, чего не происходит в рамках традиционного метода ББГКИ. Взятие квантово-механических средних по фотонным переменным с последующим суммированием по модам позволило записать систему уравнений в терминах полевых векторов и тензора Грина, сделав более прозрачным макроскопический характер эволюции излучателя в среде.

Главным результатом решения полученной системы стал вывод основного управляющего уравнения (43) для матрицы плотности ρ_a излучателя, которое определяет функциональную зависимость скорости Γ_ϵ радиационной релаксации и эффективного поля накачки \mathbf{E}' от диэлектрической проницаемости ϵ нерезонансной среды. Соответствующие уравнения Блоха без поглощения в среде (51) и с учетом поглощения (55) получают непосредственно из основного управляющего уравнения (43).

Анализ общей системы уравнений и ее последующее решение говорят о том, что вклад нерезонансных атомов среды в скорость радиационной релаксации излучателя приводит к появлению множителя $\sqrt{\epsilon}l(\epsilon)$, где функция $l(\epsilon)$ имеет вид (37). Здесь необходимо еще раз отметить, что данный результат получен на основе микроскопического гамильтониана как наиболее фундаментального. О непротиворечивости формулы $\Gamma_\epsilon = \sqrt{\epsilon}l(\epsilon)\Gamma_0$ говорит ее согласованность с экспериментальными данными.

Еще одним, не менее важным, результатом нашей работы является то, что выражение (49) для эффективного поля накачки \mathbf{E}' излучателя получается автоматически. Это происходит за счет того, что в системе уравнений (38) для излучателя одна и та же поправка $l(\epsilon)$ возникает как для $\hat{\mathbf{X}}_a$, так и для выражения поля \mathbf{E} . В результате это приводит к согласованному исключению самовоздействия излу-

чателя из управляющего уравнения для ρ_a . Анализ формулы (49) для эффективного поля накачки показывает, что в случае отсутствия среды ($\epsilon = 1$) выражение для эффективного поля накачки сводится к известной формуле локального поля Лоренца:

$$\mathbf{E}' = \bar{\mathbf{E}} + \frac{4\pi}{3}\mathbf{P}_a. \tag{58}$$

Работа выполнена при финансовой поддержке Федеральной целевой программы «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2009–2013 гг., в рамках реализации мероприятия 1.3.2 «Проведение научных исследований целевыми аспирантами» (Государственный контракт П1920), частично за счет средств государственной поддержки ведущих научных школ РФ (грант НШ-3239.2010.2) и при поддержке Министерства образования и науки РФ в рамках аналитической ведомственной целевой программы «Развитие научного потенциала высшей школы (2009–2011 гг.)», проект № 11823.

ПРИЛОЖЕНИЕ

Уравнения, описывающие динамику атомов среды (*b*-типа), имеют тот же вид, что и уравнения для атомов излучателей (*a*-типа). Так, уравнение для атомной матрицы плотности ρ_b аналогично уравнению (18) для ρ_a :

$$\frac{d}{dt}\rho_b(t) = \frac{i}{\hbar}[\hat{\mathbf{d}}_b(t), \rho_b(t)\mathbf{E}(\mathbf{r}_b, t) + \hat{\mathbf{X}}_b(\mathbf{r}_b, t)]. \tag{A.1}$$

В операторе $\hat{\mathbf{X}}_b$ учтем только слагаемые, отвечающие за затухание атомной матрицы ρ_b :

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{X}}_b(\mathbf{r}, t) = & \int_0^t dt' G^+(\mathbf{r} - \mathbf{r}_b, t - t')\rho_b(t')\hat{\mathbf{d}}_b(t') + \\ & + \int_0^t dt' G^-(\mathbf{r} - \mathbf{r}_b, t - t')\hat{\mathbf{d}}_b(t')\rho_b(t'). \end{aligned} \tag{A.2}$$

После подстановки $\hat{\mathbf{X}}_b$ в уравнение для ρ_b и применения приближения вращающейся волны получим оператор затухания, аналогичный (40):

$$\hat{\Gamma}[\rho_b] = -\frac{\Gamma_b}{2}(\hat{\sigma}_b^+\hat{\sigma}_b^-\rho_b - 2\hat{\sigma}_b^-\rho_b\hat{\sigma}_b^+ + \rho_b\hat{\sigma}_b^+\hat{\sigma}_b^-), \tag{A.3}$$

где

$$\Gamma_b = \frac{4|\mathbf{d}_b|^2\omega_b^3}{3\hbar c^3}. \tag{A.4}$$

В результате уравнение для атомной матрицы плотности ρ_b примет вид

$$\frac{d}{dt}\rho_b(t) = \frac{i}{\hbar}[\hat{\mathbf{d}}_b(t), \rho_b(t)]\mathbf{E}(\mathbf{r}_b, t) + \hat{\Gamma}[\rho_b]. \quad (\text{A.5})$$

Домножив это выражение слева на оператор дипольного момента $\hat{\mathbf{d}}_b(t)$ и продифференцировав еще раз по времени, получим дифференциальное уравнение второго порядка для среднего дипольного момента $\mathbf{p}_b(t)$:

$$\ddot{\mathbf{p}}_b + \Gamma_b \dot{\mathbf{p}}_b + \left(\omega_b^2 + \frac{\Gamma_b^2}{4}\right) \mathbf{p}_b = \mathbf{h}(t), \quad (\text{A.6})$$

где

$$\mathbf{h}(t) = \frac{2\omega_b}{\hbar}(\mathbf{d}_b \otimes \mathbf{d}_b)\mathbf{E}(t)(\rho_b^{11} - \rho_b^{22}). \quad (\text{A.7})$$

При выводе уравнения мы положили $\mathbf{d}_b = \mathbf{d}_b^*$. Аналогичное уравнение будет для выражения $\mathbf{P}_b = \text{Tr}_b(\hat{\mathbf{d}}_b g_{ab})$, входящего в уравнение для $\hat{\mathbf{X}}_a$. Поскольку уравнение для g_{ab} имеет вид

$$\frac{d}{dt}g_{ab}(t) = \frac{i}{\hbar}[\hat{\mathbf{d}}_b(t), \rho_b(t)]\hat{\mathbf{X}}_a(\mathbf{r}_b, t) + \hat{\Gamma}[g_{ab}], \quad (\text{A.8})$$

где

$$\hat{\Gamma}[g_{ab}] = -\frac{\Gamma_b}{2} \times \\ \times (\hat{\sigma}_b^+ \hat{\sigma}_b^- g_{ab} - 2\hat{\sigma}_b^- g_{ab} \hat{\sigma}_b^+ + g_{ab} \hat{\sigma}_b^+ \hat{\sigma}_b^-), \quad (\text{A.9})$$

проводя такие же преобразования, как и при получении (A.6), приходим к дифференциальному уравнению второго порядка для \mathbf{P}_b :

$$\ddot{\mathbf{P}}_b + \Gamma_b \dot{\mathbf{P}}_b + \left(\omega_b^2 + \frac{\Gamma_b^2}{4}\right) \mathbf{P}_b = \mathbf{H}(t), \quad (\text{A.10})$$

где

$$\mathbf{H}(t) = \frac{2\omega_b}{\hbar}(\mathbf{d}_b \otimes \mathbf{d}_b)\hat{\mathbf{X}}_a(t)(\rho_b^{11} - \rho_b^{22}). \quad (\text{A.11})$$

Уравнение (A.10) для \mathbf{P}_b имеет тот же вид, что и уравнение (A.6) для \mathbf{p}_b . Следовательно, функции отклика в обоих случаях аналогичны, а именно:

$$\alpha_{\omega b} = \frac{2\omega_b}{\hbar}|\mathbf{d}_b|^2 \left(\frac{1}{\omega_b^2 - \omega^2 - 2i\omega\Gamma_b + \Gamma_b^2/4} \right). \quad (\text{A.12})$$

В частности, для \mathbf{p}_b можно записать

$$\mathbf{p}_b(t) = \frac{1}{2\pi} \int d\omega \alpha_{\omega b} \mathbf{E}_\omega e^{-i\omega t}. \quad (\text{A.13})$$

Поскольку разность частот внешнего лазерного поля и дипольного перехода атомов среды много больше частоты Раби, $(\omega_b - \omega_0) \gg \Omega$, можно считать

поляризуемость $\alpha_{\omega b}$ слабо зависящей от частоты ω вблизи ω_0 . Таким образом имеем

$$\alpha_{\omega b} = \frac{2\omega_b}{\hbar}|\mathbf{d}_b|^2 \left(\frac{1}{\omega_b^2 - \omega_0^2 - 2i\omega_0\Gamma_b + \Gamma_b^2/4} \right). \quad (\text{A.14})$$

Тогда получим

$$\mathbf{p}_b(t) = \alpha_{\omega b} \frac{1}{2\pi} \int d\omega \mathbf{E}_\omega e^{-i\omega t} = \alpha_{\omega b} \mathbf{E}(t). \quad (\text{A.15})$$

ЛИТЕРАТУРА

1. P. W. Milonni, J. Mod. Opt. **42**, 1991 (1995).
2. R. J. Glauber and M. Lewenstein, Phys. Rev. A **43**, 467 (1991).
3. М. Борн, Э. Вольф, *Основы оптики*, Наука, Москва (1973).
4. J. Knoester and S. Mukamel, Phys. Rev. A **40**, 7065 (1989).
5. S. M. Barnett, B. Huttner, and R. Loudon, Phys. Rev. Lett. **68**, 3698 (1992).
6. S. M. Barnett, B. Huttner, R. Loudon, and R. Matloob, J. Phys. B **29**, 3763 (1996).
7. S. Scheel, L. Knöll, D.-G. Welsch, and S. M. Barnett, Phys. Rev. A **60**, 1590 (1999).
8. M. Fleischhauer, Phys. Rev. A **60**, 2534 (1999).
9. G. Juzeliūnas, J. Phys. B **39**, S627 (2006).
10. P. de Vries and A. Lagendijk, Phys. Rev. Lett. **81**, 1381 (1998).
11. L. Onsager, J. Amer. Chem. Soc. **58**, 1486 (1936).
12. H. T. Dung, S. Y. Buhmann, and D.-G. Welsch, Phys. Rev. A **74**, 023803 (2006).
13. M. E. Crenshaw and C. M. Bowden, Phys. Rev. Lett. **85**, 1851 (2000), с. 103.
14. M. E. Crenshaw, Phys. Rev. A **78**, 053827 (2008).
15. P. R. Berman and P. W. Milonni, Phys. Rev. Lett. **92**, 053601 (2004).
16. J. J. Maki, M. S. Malcuit, J. E. Sipe, and R. W. Boyd, Phys. Rev. Lett. **67**, 972 (1991).
17. G. L. J. A. Rikken and Y. A. R. R. Kessener, Phys. Rev. Lett. **74**, 880 (1995).
18. P. Lavallard, M. Rosenbauer, and T. Gacoin, Phys. Rev. A **54**, 5450 (1996).

19. F. J. P. Schuurmans, D. T. N. de Lang, G. H. Wegdam, R. Sprik, and A. Lagendijk, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 5077 (1998).
20. R. S. Meltzer, S. P. Feofilov, B. Tissue, and H. B. Yutan, *Phys. Rev. B* **60**, R14012 (1999).
21. G. M. Kumar, D. N. Rao, and G. S. Agarwal, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 203903 (2003).
22. S. F. Wuister, C. de Mello Donegá, and A. Meijerink, *J. Chem. Phys.* **121**, 4310 (2004).
23. C.-K. Duan, M. F. Reid, and Z. Wang, *Phys. Lett. A* **343**, 474 (2005).
24. G. M. Kumar, D. N. Rao, and G. S. Agarwal, *Opt. Lett.* **30**, 732 (2005).
25. G. M. Kumar and D. N. Rao, *Opt. Mater.* **31**, 1343 (2009).
26. L. Zampedri, M. Mattarelli, M. Montagna, and R. R. Gonçalves, *Phys. Rev. B* **75**, 073105 (2007).
27. K. Dolgaleva, R. W. Boyd, and P. W. Milonni, *J. Opt. Soc. Amer. B* **24**, 516 (2007).
28. Y. G. Choi and J. H. Song, *Chem. Phys. Lett.* **467**, 323 (2009).
29. E. He, H. Zheng, X. Zhang, and S. Qu, *Luminescence* **25**, 66 (2010).
30. K. Dolgaleva and R. W. Boyd, *J. Opt. Soc. Amer. B* **24**, A19 (2007).
31. K. Dolgaleva, R. W. Boyd, and P. W. Milonni, *J. Opt. A* **11**, 024002 (2009).
32. А. А. Пантелеев, В. К. Рерих, А. Н. Старостин, *ЖЭТФ* **123**, 255 (2003).
33. M. Bonitz, *Quantum Kinetic Theory*, В. G. Teubner, Stuttgart–Leipzig (1998).
34. Д. В. Кузнецов, В. К. Рерих, М. Г. Гладуш, *ТМФ* **168**, 261 (2011).
35. А. И. Ахиезер, В. Б. Берестецкий, *Квантовая электродинамика*, Наука, Москва (1981).
36. Э. Г. Пестов, *Труды ФИАН* **187**, 60 (1988).
37. V. K. Roerich, A. A. Panteleev, and A. N. Starostin, in: *Progress in Nonequilibrium Green's Functions II*, ed. by M. Bonitz and D. Semkat, World Sci., Singapore (2003).