

3297
ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

Экз. чит. зала

P4 - 3297



В.Л. Любошиц

О РЕЗОНАНСНОМ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ
ДВУХ ИДЕНТИЧНЫХ ДИПОЛЬНЫХ ИЗЛУЧАТЕЛЕЙ

ЛАБОРАТОРИЯ ВЫСОКИХ ЭНЕРГИЙ

1967.

P4 - 3297

В.Л. Любошиц

**О РЕЗОНАНСНОМ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ
ДВУХ ИДЕНТИЧНЫХ ДИПОЛЬНЫХ ИЗЛУЧАТЕЛЕЙ**

Направлено в ЖЭТФ

В работе автора^{/1/} была решена задача о рассеянии электромагнитных волн на совокупности неподвижных дипольных центров. Там же было рассмотрено резонансное рассеяние электромагнитных волн на двух одинаковых изотропных осцилляторах, расположенных на конечном расстоянии R друг от друга.

Данная работа является непосредственным продолжением работы^{/1/} и посвящена классическому и квантовому расчету спектра излучения двух идентичных дипольных излучателей. Получено общее решение этой задачи при произвольных значениях частот электромагнитных волн с последовательным учетом резонансного взаимодействия дипольных центров через поле излучения. Окончательные результаты, которые можно представить в виде компактных формул, обобщаются на случай двухатомной молекулы, у которой одно из ядер находится в основном, а другое - в возбужденном состоянии (оба ядра относятся к одному и тому же изотопу).

Вопрос об изучении двух одинаковых изотропных осцилляторов был ранее частично рассмотрен в работе Подгоренского и Ройзена^{/2/} в пределе коротких волн (см. также книгу Файна и Ханина^{/3/}, § 32).

В рамках настоящей работы мы оставляем в стороне проблему излучения в макроскопическом коллективе одинаковых излучателей, отдельные стороны которой исследовались многими авторами (см., например,^{/3/}).

1, Излучение двух одинаковых изотропных осцилляторов

С классической точки зрения рассеяние электромагнитных волн следует рассматривать как излучение в результате вынужденных колебаний дипольного

момента системы под действием электрического поля падающей волны. Хорошо известно, что резонансные параметры, характеризующие вынужденные колебания, в точности совпадают с частотами и ширинами нормальных колебаний данной системы. В работе ^{1/} при исследовании проблемы резонансного рассеяния были рассмотрены вынужденные колебания двух изотропных осцилляторов, резонансно связанных друг с другом полем излучения. Согласно ^{1/}, индуцированные дипольные моменты первого и второго осцилляторов параллельны вектору поляризации падающей волны \vec{e} и отличаются по фазе колебаний на величину $\vec{k}R$, где \vec{k} - волновой вектор. При этом каждый из дипольных моментов можно представить в виде суммы четырех резонансных членов, соответствующих, очевидно, четырем нормальным колебаниям системы двух осцилляторов ^{x)}. Отсюда ясно, что при рассмотрении излучения электромагнитных волн системой двух неподвижных дипольных центров мы можем, не проводя новых вычислений, непосредственно воспользоваться результатами работы ^{1/}. Эти результаты сводятся к следующему.

а) Если дипольные моменты двух одинаковых осцилляторов параллельны друг другу и перпендикулярны вектору \vec{R} , причем амплитуды и фазы их колебаний совпадают, частота излучения $\omega^{(1)}$ и ширина спектральной линии $\gamma^{(1)}$ связаны с частотой излучения ω_0 и шириной спектральной линии γ изолированного осциллятора соотношениями:

$$\omega^{(1)} = \omega_0 + \frac{3}{4} \gamma \left(\frac{c}{\omega_0 R} \right)^3 \quad (1)$$

$$\gamma^{(1)} = 2\gamma \quad (2)$$

б) Если дипольные моменты двух осцилляторов параллельны друг другу и перпендикулярны вектору \vec{R} , причем амплитуды их колебаний одинаковы, а фазы противоположны, частота излучения $\omega^{(2)}$ и ширина спектральной линии $\gamma^{(2)}$ равны

$$\omega^{(2)} = \omega_0 - \frac{3}{4} \gamma \left(\frac{c}{\omega_0 R} \right)^3 \quad (3)$$

$$\gamma^{(2)} = \frac{1}{5} \gamma \left(\frac{\omega_0 R}{c} \right) \quad (4)$$

^{x)} Свободные колебания дипольных моментов описываются однородной частью той же системы дифференциальных уравнений, что и вынужденные (ср. ^{1/}, и ^{2/}).

в) Если дипольные моменты двух осцилляторов параллельны вектору \vec{R} , причем амплитуды и фазы их колебаний одинаковы, частота излучения $\omega^{(3)}$ и ширина спектральной линии $\gamma^{(3)}$ равны

$$\omega^{(3)} = \omega_0 - \frac{3}{2} \gamma \left(\frac{c}{\omega_0 R} \right)^3 \quad (5)$$

$$\gamma^{(3)} = 2\gamma. \quad (6)$$

г) Если дипольные моменты двух осцилляторов параллельны вектору \vec{R} , причем амплитуды их колебаний одинаковы, а фазы противоположны, частота излучения $\omega^{(4)}$ и ширина спектральной линии $\gamma^{(4)}$ равны:

$$\omega^{(4)} = \omega_0 + \frac{3}{2} \gamma \left(\frac{c}{\omega_0 R} \right)^3 \quad (7)$$

$$\gamma^{(4)} = \frac{1}{10} \gamma \left(\frac{\omega_0 R}{c} \right)^2. \quad (8)$$

Формулы (1)–(8) справедливы в длинноволновом пределе. Однако ясно, что характер и число нормальных колебаний системы двух одинаковых изотропных осцилляторов сохраняются и в общем случае, при произвольных значениях частоты ω_0 . Используя общее выражение для амплитуды рассеяния электромагнитных волн на системе двух дипольных центров (см. формулы (24) работы /1/ или (39) /1а/), нетрудно получить выражения для частот и ширины нормальных колебаний и при $\frac{\omega_0 R}{c} > 1$ (х). Считая, что, как всегда $\gamma \ll \omega_0$, мы можем написать (сохраняя прежнюю нумерацию нормальных колебаний):

$$\begin{aligned} \omega^{(1)} - \omega_0 &= \omega_0 - \omega^{(2)} = \\ &= \frac{3}{4} \gamma \left\{ (\cos kR) \left[\frac{1}{(kR)^3} - \frac{1}{kR} \right] + (\sin kR) \frac{1}{(kR)^2} \right\} \end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \gamma^{(1)} - \gamma &= \gamma - \gamma^{(2)} = \\ &= -\frac{3}{2} \gamma \left\{ (\sin kR) \left[\frac{1}{(kR)^3} - \frac{1}{kR} \right] - (\cos kR) \frac{1}{(kR)^2} \right\} \end{aligned} \quad (10)$$

х) Эти же формулы, разумеется, могут быть получены с помощью метода работы /2/.

$$\begin{aligned} \omega^{(3)} - \omega_0 &= \omega_0 - \omega^{(4)} = \\ &= -\frac{3}{2} \gamma \left\{ (\cos kR) \frac{1}{(kR)^3} + \frac{1}{(kR)^2} (\sin kR) \right\} \end{aligned} \quad (11)$$

$$\dot{\gamma}^{(3)} - \dot{\gamma} = \dot{\gamma} - \dot{\gamma}^{(4)} = 3\gamma \left\{ \frac{1}{(kR)^3} \sin kR - \frac{1}{(kR)^2} (\cos kR) \right\}, \quad (12)$$

где $k = \frac{\omega_0}{c}$. В пределе $kR \ll 1$ формулы (9)–(12) переходят в (1)–(8).

Заметим, что соотношение (10) для поперечных колебаний приведено в книге Файна и Ханина^{/3/} (см. § 32). При $kR \gg 1$ выражения (9)–(10) совпадают с результатами работы^{/2/}:

$$\omega^{(1)} - \omega_0 = \omega_0 - \omega^{(2)} = -\frac{3}{4} \gamma \frac{1}{kR} \cos kR \quad (13)$$

$$\dot{\gamma}^{(1)} - \dot{\gamma} = \dot{\gamma} - \dot{\gamma}^{(2)} = \frac{3}{4} \gamma \frac{1}{kR} \sin kR \quad (14)$$

В случае колебаний дипольных моментов параллельно вектору (эти колебания в работах^{/2/} и^{/3/} не рассматривались) при $kR \gg 1$ $\Delta\omega \sim \Delta\dot{\gamma} \sim \gamma \frac{1}{(kR)^2}$.

При произвольных условиях возбуждения колебаний спектр излучения двух одинаковых изотропных осцилляторов, вообще говоря, состоит из четырех спектральных линий. В случае длинных волн ($kR \ll 1$) эти линии разделены ($\Delta\omega \gg \gamma$), а в случае коротких волн они перекрываются ($\Delta\omega \ll \gamma$). Если в начальный момент времени $t = 0$ значения дипольных моментов первого и второго осцилляторов равны \vec{d}_1 и \vec{d}_2 , разложение по нормальным колебаниям приводит к следующим выражениям для дипольных моментов при $t \neq 0$:

$$\begin{aligned} \vec{D}_1(t) + \vec{D}_2(t) &= (\vec{d}_1 + \vec{d}_2)_{\perp} e^{-\gamma \frac{(1)t}{2}} \cos \omega^{(1)} t + \\ &+ (\vec{d}_1 + \vec{d}_2)_{\parallel} e^{-\gamma \frac{(3)t}{2}} \cos \omega^{(3)} t; \end{aligned} \quad (15)$$

$$\begin{aligned} \vec{D}_1(t) - \vec{D}_2(t) &= (\vec{d}_1 - \vec{d}_2)_{\perp} e^{-\gamma \frac{(2)t}{2}} \cos \omega^{(2)} t + \\ &+ (\vec{d}_1 - \vec{d}_2)_{\parallel} e^{-\gamma \frac{(4)t}{2}} \cos \omega^{(4)} t. \end{aligned} \quad (16)$$

Индексы \perp и \parallel соответствуют поперечным и продольным (относительно вектора \vec{R}) компонентам дипольных моментов. Если в начальный момент времени возбужден лишь один осциллятор, в формулах (15), (16) следует положить $\vec{d}_2 = 0$ (или $\vec{d}_1 = 0$).

§ 2. Квантовая трактовка излучения двух неподвижных дипольных центров

Квантовым аналогом изотропного осциллятора является двухуровневый центр, который в основном состоянии обладает спином 0, а в возбужденном состоянии - спином, равным 1, причем четности обоих уровней противоположны. Легко видеть, что в этом случае при переходе из возбужденного состояния в основное имеет место чисто дипольное электрическое излучение.

Пусть два таких двухуровневых центра неподвижно закреплены в точках \vec{R}_1 и \vec{R}_2 , причем один из них находится в возбужденном, а другой - в основном состоянии.

Обозначим внутреннюю волновую функцию возбужденного состояния i -ого центра $B_m(i)$ (m - проекция спина на направление вектора $\vec{R} = \vec{R}_1 - \vec{R}_2$, $i=1,2$), а внутреннюю волновую функцию основного состояния i -ого центра $A(i)$. При отсутствии электромагнитного взаимодействия между центрами мы будем иметь шесть вырожденных ортогональных состояний, соответствующих возбуждению одного из центра. Запишем их в виде:

$$(I) A(1)B_{+1}(2), \quad (II) B_{+1}(1)A(2) \quad (17)$$

$$(III) A(1)B_0(2), \quad (IV) B_0(1)A(2) \quad (18)$$

$$(V) A(1)B_{-1}(2), \quad (VI) B_{-1}(1)A(2). \quad (19)$$

Всем этим состояниям в нулевом приближении соответствует одна и та же энергия $E = E_A + E_B$ (x).

x) Мы считаем, что оба центра нейтральны. Дальнейшие рассуждения, однако, остаются в силе, если центры заряжены; в этом случае кулоновскую энергию мы должны включить в энергию нулевого приближения: $E = E_A + E_B + E_{кул}$.

Рассмотрим резонансное электромагнитное взаимодействие между центрами. Прежде всего, очевидно, что поскольку средние дипольные моменты обоих центров равны нулю как в основном, так и в возбужденном состоянии (отличны от нуля только дипольные моменты переходов), все диагональные матричные элементы электромагнитного взаимодействия тождественно равны нулю. Можно также заранее ожидать, что электромагнитное взаимодействие не смешивает состояний с разными значениями m (закон сохранения проекции момента количества движения). Отсюда непосредственно следует, что квазистационарным состояниям, обладающим определенной энергией и временем жизни, соответствуют симметричные и антисимметричные комбинации состояний (I) и (II), (III) и (IV), (V) и (VI).

$$\psi_m^{(\pm)}(1,2) = \frac{1}{\sqrt{2}} (A(1)B_m(2) \pm A(2)B_m(1)) \quad (m = +1, 0, -1) \quad (20)$$

Вычислим энергию и время жизни этих коллективных возбужденных состояний. Мы будем считать, что энергия резонансного взаимодействия между центрами во много раз меньше частоты излучения $\hbar\omega_0 = E_B - E_A$. Во втором порядке по электромагнитной константе матричный элемент резонансного взаимодействия между центрами B и A, согласно принципу соответствия с классической теорией^{/4/}, можно представить в виде:

$$U_{AB;BA} = -\vec{E}_{AB}^{(1)}(\omega_0) \vec{d}_{BA}^{(2)} \quad (21)$$

где $\vec{E}_{AB}(\omega_0)$ - комплексный вектор, равный по величине компоненте Фурье электрического поля, которое создает дипольный момент перехода первого центра в точке, где находится второй центр, $\vec{d}_{BA}^{(2)}$ - дипольный момент перехода второго центра. Подставляя в формулу (21) явный вид $\vec{E}_{AB}(\omega_0)$ (см. ^{/5/}), мы получим:

х) Формула (21) для неподвижно закрепленных дипольных центров непосредственно следует из общего выражения для запаздывающего электромагнитного взаимодействия:^{/6/}

$$U_{AB;BA} = - \left\{ \int_{AB}(\vec{r}_1) \int_{AB}^*(\vec{r}_2) \frac{e^{-i \frac{E_B - E_A}{\hbar c} |\vec{r}_1 - \vec{r}_2|}}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d^3\vec{r}_1 d^3\vec{r}_2 \right\},$$

где $\int_{AB} = \left\{ \int_{AB}, i c \rho_{AB} \right\}$ - четырехмерная плотность "тока перехода".

$$U_{AB; BA} = - \left[\frac{d_{AB}^{(1)} d_{AB}^{(2)*}}{R} k^2 e^{ikR} + (d_{AB}^{(1)} \vec{\nabla}) (d_{AB}^{(2)*} \vec{\nabla}) \frac{e^{ikR}}{R} \right] \quad (22)$$

где $R = |\vec{R}_2 - \vec{R}_1|$, $k = \frac{\omega_0}{c} = \frac{E_B - E_A}{\hbar c}$.

Запишем теперь матричные элементы (22) в представлении (17) - (19). Учтем при этом, что ширина возбужденного уровня изолированного центра $\gamma = \frac{4}{3\pi} k^3 |d_{AB}^{(1)}|^2$ и не зависит от магнитного квантового числа m . При этом $d_{AB}^{(1)} = d_{AB}^{(2)}$ и $d_{AB}^{(1)} = d_{AB}^{(2)}$ перпендикулярны друг другу и вектору \vec{R} , а дипольный момент перехода $d_{AB_0}^{(1)} = d_{AB_0}^{(2)}$ направлен вдоль вектора \vec{R} . В результате мы получим:

$$U_{I, II}^{(I)} = U_{II, I} = U_{V, VI} = U_{VI, V} = -\frac{3}{4} \gamma \hbar \left(\frac{1}{kR} + i \frac{1}{(kR)^2} - \frac{1}{(kR)^3} \right) e^{ikR} \quad (23)$$

$$U_{III, IV}^{(II)} = U_{IV, III} = -\frac{3}{4} \gamma \hbar \left(\frac{1}{(kR)^3} - i \frac{1}{(kR)^2} \right) e^{ikR}. \quad (24)$$

Все остальные матричные элементы равны нулю. В представлении волновых функций (20) матрица U диагональна, и ее собственные значения равны

$$U_{+1}^{(\pm)} = U_{-1}^{(\pm)} = \pm U_{0}^{(I)}; U_{0}^{(\pm)} = \pm U_{0}^{(II)}. \quad (25)$$

Заметим, что $U_m^{(\pm)}$ - комплексные числа. Это связано с тем, что матрица U , описывающая запаздывающее взаимодействие, не отвечает чисто стационарной задаче /6/.

Реальная и мнимая части величины

$$U_m^{(\pm)} = \pm (\Delta E_m - i \frac{\Delta \Gamma_m}{2}) = \pm \hbar (\Delta \omega_m - i \frac{\Delta \gamma_m}{2})$$

имеют обычный физический смысл: ΔE_m характеризует сдвиг энергетического уровня (аналогичный лэмбовскому сдвигу $/3,8/$), а $\Delta \gamma_m$ - изменение ширины уровня. Нетрудно убедиться в том, что для частот $\omega_m^{(\pm)}$ и ширины $\gamma_m^{(\pm)}$ дипольного γ -излучения, имеющего при переходе из состояний (20) в основное состояние $\psi_0 = A(1)A(2)$, мы получим соотношения (9) - (12) классической теории (при этом $\omega_{+1}^{(\pm)} = \omega_{-1}^{(\pm)} = \omega^{(1)}$, $\gamma_{+1}^{(+)} = \gamma_{-1}^{(+)} = \gamma^{(1)}$ и т.д.).

Соотношение $\gamma_m^{(\pm)} = \gamma + \frac{2}{\hbar} \text{Im} U_m^{(\pm)+1}$ можно получить также путем непосредственного вычисления вероятности дипольного γ -излучения при переходах из коллективных возбужденных состояний двух центров в основное состояние ψ_0 .

Действительно, полная вероятность излучения в единицу времени равна:

$$\begin{aligned} \gamma_m^{(\pm)} &= \frac{k^3}{4\pi\hbar} \int | \vec{d}_{AB_m} e^{i\frac{\vec{k}\vec{R}}{2}} \pm \vec{d}_{AB_m} e^{-i\frac{\vec{k}\vec{R}}{2}} |^2 d\Omega_{\vec{k}} = \\ &= \gamma \pm \frac{2}{\hbar} \text{Im} \left(k^2 \frac{|\vec{d}_{AB_m}|^2}{R} e^{ikR} + (\vec{d}_{AB_m} \vec{\nabla})(\vec{d}_{AB_m}^* \vec{\nabla}) \frac{e^{ikR}}{R} \right). \end{aligned} \quad (26)$$

Таким образом, отличие величины $\gamma_m - \gamma$ от нуля обусловлено исключительно интерференцией излучения двух центров при γ -распаде коллективных возбужденных состояний (20).

Рассмотрим теперь два одинаковых анизотропных центра с произвольно ориентированными осями. В этом случае возбужденное состояние каждого из центров является невырожденным. Электромагнитное взаимодействие снимает вырождение между симметричным и антисимметричным состояниями двух центров. Для сдвигов энергетических уровней и изменения ширины спектральных линий мы получим:

$$\Delta E = \pm \text{Re} U_{AB, B'A'}; \Delta \Gamma^{(\pm)} = \mp 2 \text{Im} U_{AB, B'A'}$$

где, согласно общему результату (22),

$$U_{AB, B'A'} = U^{(1)} \cos \theta + (U^{(1)} - U^{(2)}) \cos \psi_1 \cos \psi_2. \quad (27)$$

Здесь $U^{(1)}$ и $U^{(2)}$ определяются по формулам (23) - (24) соответственно, θ - угол между дипольными моментами переходов $\vec{d}_{AB}^{(1)}$ и $\vec{d}_{A'B'}^{(2)}$, ψ_1 и ψ_2 - углы между векторами \vec{R} и $\vec{d}_{AB}^{(1)}$ и $\vec{d}_{A'B'}^{(2)}$ соответственно

$$(|\vec{d}_{AB}^{(1)}| = |\vec{d}_{A'B}^{(2)}|).$$

В длинноволновом пределе

$$\Delta \omega^{(\pm)} = \pm \left[\frac{3}{4} \gamma \frac{1}{(kR)^3} (\cos \theta - 3 \cos \psi_1 \cos \psi_2) \right]$$

$$\gamma^{(\pm)} = \gamma (1 \pm \cos \theta) \pm \frac{1}{10} \gamma (kR)^2 (2 \cos \theta - \cos \psi_1 \cos \psi_2). \quad (28)$$

Если направления осей двух центров параллельны друг другу ($\theta = 0$), то согласно (28), $\gamma^{(-)} \ll \gamma^{(+)} = 2\gamma$. Это означает, что, например, при импульсном облучении антисимметричное состояние двух центров практически не возбуждается. То же самое имеет место и в случае изотропных центров (узкие резонансы в длинноволновом пределе, см. § 1 и /1/).

Если $\cos \theta \neq 1$, ширины $\gamma^{(-)}$ и $\gamma^{(+)}$ имеют один и тот же порядок величины. Легко видеть, что при одном и том же направлении излучения поляризации фотонов с частотами $\omega^{(+)}$ и $\omega^{(-)}$ взаимно перпендикулярны.

Заметим, что расщепление энергетических уровней анизотропных центров, рассмотренное нами выше, по сути дела представляет собой наглядную модель так называемого "давидовского" расщепления коллективных энергетических уровней в анизотропном кристалле в случае, когда кристаллическая ячейка содержит две одинаковые молекулы с различной ориентацией осей /7/.

В заключение этого раздела рассмотрим интересный вопрос о передаче возбуждения от одного центра другому. Пусть в момент времени $t = 0$ первый центр (с координатной \vec{R}_1) находится в возбужденном состоянии, а второй - в основном; будем считать, что при $t = 0$ уже "включено" резонансное взаимодействие (22). Разлагая волновую функцию $B(1)A(2)$ по квазистационарным состояниям (20), мы для вероятности передачи возбуждения от первого центра второму получим следующее выражение:

$$P(t) = \frac{1}{4} \left| \exp(-i\omega^{(+)}t - \frac{1}{2}\gamma^{(+)}t) - \exp(-i\omega^{(-)}t - \frac{1}{2}\gamma^{(-)}t) \right|. \quad (29)$$

Легко видеть, что в длинноволновом пределе за время жизни возбужденного состояния $t \sim \frac{1}{\gamma}$ будет иметь место многократная миграция возбуждения от одного центра к другому с частотой $\sim \gamma \frac{1}{(kR)^3}$.

Анализ показывает, что если при возбуждении первого центра второй центр первоначально не испытывает никакого воздействия, запаздывающее взаимодействие (22) устанавливается через промежуток времени $\frac{R}{c}$ после момента возбуждения. При $t' < \frac{R}{c}$ в соответствии с принципом причинности взаимодействие между центрами отсутствует и вероятность передачи возбуждения равна нулю^{х)}.

Разница между t в формуле (29) и $t' = t + \frac{R}{c}$ незначительна, если $y \frac{R}{c} \ll 1$. Мы в дальнейшем будем считать, что это неравенство выполняется. Строго говоря, именно в этом приближении соотношения (22) - (25) имеют смысл: при $y > \frac{c}{R}$ их следует усреднить по спектру частот излучения $\Delta\omega \sim y$. Отметим, что если $y \frac{R}{c} \gg 1$, матричные элементы (22) - (25) после усреднения по спектру частот стремятся к нулю.

§ 3. Симметрия квазистационарных состояний возбужденного и невозбужденного центров

Матрица резонансного дипольного взаимодействия между двумя центрами В и А со спинами $S_B = 1$ и $S_A = 0$ может быть записана в следующей компактной форме:

$$U = [C(R) + D(R)(\vec{S}_B \cdot \vec{n})^2] \mathcal{P}_{A \leftrightarrow B}, \quad (30)$$

где \vec{S}_B - оператор спина возбужденного ядра,

$$C(R) = -\frac{3}{2} y \hbar \left[\frac{1}{(kR)^3} - i \frac{1}{(kR)^2} \right] e^{ikR}$$

$$D(R) = -\frac{3}{4} y \hbar \left[\frac{1}{kR} + \frac{3}{(kR)^2} i - 3 \frac{1}{(kR)^3} \right] e^{ikR}, \quad (31)$$

$\mathcal{P}_{A \leftrightarrow B}$ - обменный оператор:

$$\mathcal{P}_{A \leftrightarrow B} A(1)B(2) = B(1)A(2), \quad \mathcal{P}_{A \leftrightarrow B} B(1)A(2) = A(1)B(2).$$

^{х)} Этот вывод не согласуется с утверждением работы /8/.

Собственными функциями $\mathcal{P}_{A \rightarrow B}$ являются состояния (20), а соответствующие собственные значения равны +1 и -1. Легко видеть, что равенства (30)-(31) полностью эквивалентны соотношениям (23)-(25).

В общем случае (произвольные спины S_A и S_B) взаимодействие U всегда можно представить в виде $U = M \mathcal{P}_{A \rightarrow B}$, где M - оператор в спиновом пространстве двух частиц. Отсюда следует, что квазистационарные состояния системы двух неподвижных центров обладают определенной симметрией по отношению к перестановке первого и второго центров (или определенным значением полного энергетического спина τ , равного в данном случае 1 или 0, см. /3/). Последнее утверждение справедливо во всех случаях, когда существует спонтанный переход $B \rightarrow A$ (не обязательно электромагнитного характера). При этом "внутренние" волновые функции коллективных возбужденных состояний двух неподвижных центров имеют общую структуру:

$$\psi_M^{(\pm)} = \sum_m \alpha_{m, M-m} (B_m(1) A_{M-m}(2) \pm A_{M-m}(1) B_m(2)), \quad (32)$$

где m и $m' = M - m$ - проекции обычных спинов на вектор \vec{R}^x .

Подчеркнем, что "внутренние" функции типа (32) зависят от спиновых переменных. При $S_A \neq S_B$ построение чисто спиновой функции двух частиц, обладающей определенной симметрией по отношению к их перестановке, а также внутренней функции, не связанной со спином (аналогичной чисто изотопической функции двух нуклонов или π -мезонов), принципиально невозможно. Если $S_A = S_B$ выделение чисто спиновой функции двух частиц становится возможным, но для нашей проблемы эта операция не имеет смысла (см. применение).

До сих пор мы рассматривали неподвижные центры. Пусть теперь центры A и B локализованы в двух конечных областях пространства в окрестности точек $\vec{R}_1^{(0)}$ и $\vec{R}_2^{(0)}$, причем эти области не перекрываются. Соответствующие волновые функции обозначим $\psi_a(\vec{R}_{1(2)} - \vec{R}_{1(2)}^{(0)})$ и $\psi_b(\vec{R}_{1(2)} - \vec{R}_{1(2)}^{(0)})$, где s и t - квантовые числа колебательного (или иного) движения.

x) Функции $\psi_M^{(\pm)}$ соответствуют определенному значению проекции суммарного спина M_M , но, вообще говоря, они не являются собственными функциями оператора квадрата полного спина $(S_A + S_B)^2$. Исключение составляет рассмотренный нами ранее случай $S_A = 0$ (а также $S_B = 0$ и $S_A = S_B = \frac{1}{2}$).

Легко показать (подробнее см. § 4), что если резонансное взаимодействие (22) гораздо меньше расстояния между соседними энергетическими уровнями v и v' (t и t'), а частота γ -излучения гораздо больше этого расстояния, выражение (30) для неподвижных центров следует просто усреднить по волновым функциям квазистационарных состояний системы АВ:

$$\overline{U(R)} = \pm (C'(R^{(0)}) + D'(R^{(0)}) (\overline{S_n^{(0)}})^2), \quad (33)$$

где $\overline{S_n^{(0)}} = \frac{\vec{R}_2^{(0)} - \vec{R}_1^{(0)}}{|\vec{R}_2^{(0)} - \vec{R}_1^{(0)}|}$ (как и прежде мы рассматриваем случай $S_B = 1, S_A = 0$).

При этом

$$\overline{U_{+1}^{(\pm)}} = \pm (C'(R^{(0)}) + D'(R^{(0)})) \quad (34)$$

$$\overline{U_0^{(\pm)}} = \pm C'(R^{(0)})$$

($m = 0 \pm 1$ - проекция спина возбужденного центра на вектор $\vec{n}^{(0)}$).

Волновые функции, по которым проводится усреднение, имеют вид:

$$\psi_m^{(\pm)}(1,2) = \frac{1}{\sqrt{2}} [B_m(1)A(2) \pm A(1)B_m(2)] \psi_n(\vec{R}_1 - \vec{R}_1^{(0)}) \psi_l(\vec{R}_2 - \vec{R}_2^{(0)}). \quad (35)$$

Формулы типа (33), (34) описывают, например, расщепление энергетических уровней молекул с двумя одинаковыми ядрами, "вмороженных" в качестве примеси в твердое тело. Легко видеть, что если амплитуда колебаний (область локализации) больше длины волны γ -излучения $\lambda = \frac{1}{k}$, величины $C'(R^{(0)})$ и $D'(R^{(0)})$ близки к нулю. Это фактически означает, что изменение энергии и времени жизни возбужденного ядра в принципе может иметь место в случае, когда вероятность эффекта Мёссбауэра (γ -перехода без возбуждения связи) заметно отличается от нуля.

В реальных случаях $kR^{(0)} > 1$ (см. § 4). Легко видеть, что относительное изменение радиационного времени жизни возбужденного ядра в молекуле с ориентированной осью составляет $\frac{1}{kR^{(0)}}$ при $m = \pm 1$ и $\frac{1}{(kR^{(0)})^2}$ при $m = 0$.

Рассмотрим теперь вопрос о симметрии полной волновой функции тождественных частиц, зависящей от пространственных координат обеих частиц и дискретных внутренних координат^{x)}. Чисто формально мы всегда можем трактовать различные частицы А и В как два состояния одной и той же частицы, которым соответствуют различные значения дискретной энергетической переменной r_3 . Если мы переставим координаты двух частиц, а после этого произведем замену $A \leftrightarrow B$, квантовое состояние системы двух частиц не изменится. Эта операция, очевидно, эквивалентна перестановке пространственных и дискретных координат. Повторяя обычные в таких условиях рассуждения, мы приходим к выводу, что полная функция частиц А и В может быть либо симметричной, либо антисимметричной по отношению к такой перестановке.

Нетрудно показать, что спонтанный переход $BA \rightarrow AA + \gamma$ может иметь место только при условии, что полная волновая функция системы ВА имеет ту же симметрию, что и волновая функция двух тождественных частиц. Это означает, что

- а) полная волновая функция двух частиц с целыми спинами симметрична;
- б) полная волновая функция системы двух частиц с полуцелыми спинами антисимметрична.

Теоремы а) и б) непосредственно следуют из аппарата квантовой теории поля (при условии, что операторы любых бозонных полей коммутируют, а фермионных - антикоммутируют).

В частности, если частицы А и В со спинами $S_A = 0$ и $S_B = 1$ образуют связанную систему, полная волновая функция симметрична и может быть представлена в виде:

$$\Phi(1,2) = \frac{1}{\sqrt{2}} \sum_m \beta(m) [B_m(1) A(2) \phi(\vec{R}_1 - \vec{R}_2) + A(1) B_m(2) \phi(\vec{R}_2 - \vec{R}_1)] \times \chi \left(\frac{M_1 \vec{R}_1 + M_2 \vec{R}_2}{M_1 + M_2} \right). \quad (36)$$

x) К ним относятся спин, заряд, масса и т.д.

xx) Масса частицы связана с энергетической переменной r_3 соотношением

$$M = \frac{M_A + M_B}{2} + (M_B - M_A) r_3, \text{ где } r_3 \text{ может принимать значения } +\frac{1}{2} \text{ и } -\frac{1}{2}.$$

В данном случае $r_3^{(1)} + r_3^{(2)} = r_3 = 0$.

Здесь $\phi(\vec{R})$ - волновая функция относительного движения,

$\chi\left(\frac{M_1 \vec{R}_1 + M_2 \vec{R}_2}{M_1 + M_2}\right)$ - волновая функция, описывающая движение центра инерции $\vec{R}_{\text{ц.и.}}$.

Функция χ , как нетрудно видеть, симметрична по отношению к полной перестановке частиц А и В. Поскольку нас интересует случай $\Delta M = \frac{\hbar \omega_0}{c^2} \ll M_1 + M_2$, мы в дальнейшем будем считать, что $\vec{R}_{\text{ц.и.}} = \frac{1}{2}(\vec{R}_1 + \vec{R}_2)$.

Следует отметить, что энергетическим уровням двух частиц, резонансно взаимодействующих друг с другом через поле излучения, соответствует волновая функция относительного движения определенной симметрии (четности): $\phi(\vec{R}_1 - \vec{R}_2) = \pm \phi(\vec{R}_2 - \vec{R}_1)$. Это связано с тем, что внутренняя функция квазистационарных состояний частиц А и В при наличии спонтанного перехода $B \rightarrow A$ симметрична или антисимметрична относительно замены $A \rightarrow B$ (см. выше). Полная волновая функция в данном случае может быть представлена в виде произведения трех функций:

$$\Phi(1,2) = \phi^{(\pm)}(\vec{R}_1 - \vec{R}_2) \chi\left(\frac{\vec{R}_1 + \vec{R}_2}{2}\right). \quad (37)$$

Из (37) следует, что знаки симметрии "внутренней" функции и функции $\phi(\vec{R})$ в случае целых спинов совпадают, а в случае полупелых спинов противоположны.

4. Случай двухатомной молекулы

Рассмотрим свободную двухатомную молекулу, одно из ядер которой (В) находится в возбужденном состоянии, а другое (А) - в основном, причем оба ядра относятся к одному и тому же изотопу. Будем по-прежнему считать, что имеет место чистый $E1$ -переход $B \rightarrow A + \gamma$, в результате которого образуется

х) Аналогичный вид имеет, например, полная волновая функция протона и нейтрона или двух пионов в теории изотопического спина, полная волновая функция частицы и античастицы и т.д.

молекула с двумя тождественными ядрами. Исследуем влияние резонансного взаимодействия на время жизни возбужденного ядра в молекуле и на структуру молекулярных уровней молекулы с возбужденным ядром.

Потребуем выполнения следующих неравенств

$$\omega_0 \gg \Delta\omega_{\text{кол}} \gg \Delta\omega_{\text{вр}} \gg \gamma \quad (39)$$

$$\frac{c}{R_0} \gg \Delta\omega_{\text{кол}} \gg \Delta\omega_{\text{вр}} \gg \gamma \quad (40)$$

$$\left(\frac{\hbar\omega_0}{Mc^2}\right) \frac{R_0}{c} \ll a_{\text{кол}} \sim \frac{\hbar}{\sqrt{2M\hbar\omega_{\text{кол}}}} \quad (41)$$

Здесь ω_0 и γ - частота и ширина γ - излучения при распаде $B \rightarrow A$, $\Delta\omega_{\text{кол}}$ и $\Delta\omega_{\text{вр}}$ - расстояние между соседними колебательными и вращательными уровнями молекулы (в сек⁻¹), R_0 - среднее расстояние между ядрами А и В, M - масса ядра ($M_A \approx M_B$), $a_{\text{кол}}$ - амплитуда колебаний ядер в молекуле.

Процесс передачи возбуждения от ядра В к ядру А можно наглядно представить себе в виде совокупности последовательных толчков: ядро В с координатой \vec{R}_1 излучает фотон и переходит в ядро А, а ядро А с координатой \vec{R}_2 поглощает фотон и переходит в ядро В. При выполнении условий (39) - (40) эффективное время передачи возбуждения, равное по порядку величины $\tau \sim \frac{2}{\omega_0} + \frac{R_0}{c/9}$ ($\frac{1}{\omega_0}$ - время вылета из ядра пакета γ - квантов с размерами $\sim \lambda = \frac{c}{\omega_0}$), ничтожно мало по сравнению с временами, характеризующими движение ядер в молекуле. С другой стороны, неравенство (41) означает, что мы можем пренебречь изменением взаимного расположения ядер в молекуле за счет того, что в процессе излучения фотона ядро В приобретает скорость $v = \frac{\hbar\omega_0}{Mc}$.

Таким образом, в приближении (39) - (41) за эффективное время τ координаты ядер практически не успевают измениться. Это означает, что взаимодействие (30) - (31) для неподвижных центров следует рассматривать как оператор, действующий в пространстве волновых функций относительного движения ядер $\phi_{\text{нк}}(\vec{R})$ (n и K - квантовые числа колебательных и вращательных уровней молекулы). Поскольку ширина γ существенно меньше величин $\Delta\omega_{\text{вр}}$ и $\Delta\omega_{\text{кол}}$,

мы можем считать, что $C(R)$ и $D(R) \ll \hbar \Delta \omega$ (см. (31)) и воспользоваться теорией возмущений.

Волновая функция квазистационарных состояний двух ядер в двухатомной молекуле может быть записана в форме (37). Представим функцию относительного движения ядер в виде произведения волновой функции колебательного движения $\phi_n(R)$ ($R = |\vec{R}_1 - \vec{R}_2|$) и угловой функции, характеризующей вращение молекулы. Усредним теперь взаимодействие (30) по колебательному движению. Мы получим

$$\bar{U}_n = \pm [\bar{C}_n + \bar{D}_n (\hat{S}_n^2)], \quad (42)$$

где

$$C_n = \int |\phi_n(R)|^2 C(R) R^2 dR \quad (43)$$

$$D_n = \int |\phi_n(R)|^2 D(R) R^2 dR$$

$C(R)$ и $D(R)$ определяются по формуле (31).

Согласно § 3, знак (+) в формуле (42) соответствует четной функции $\phi_{nK}(\vec{R}_1 - \vec{R}_2)$, а знак (-) - нечетной функции $\phi_{nK}(\vec{R}_1 - \vec{R}_2)$. В случае Σ -термов (проекция электронного момента на ось молекулы равна нулю) знак выражения (42) определяется по формуле $(-1)^K$, где K - вращательный момент молекулы.

После усреднения оператора (42) по вращению молекулы мы получим

$$\bar{U}_{nK} = \pm (\bar{C}_n + \bar{D}_n \hat{S}_i \hat{S}_k \overline{n_i n_k}), \quad (44)$$

где

$$\overline{n_i n_k} = a_K (\hat{K}_i \hat{K}_k + \hat{K}_k \hat{K}_i) + b_K \delta_{ik}.$$

Здесь \hat{K} - оператор сохраняющегося момента импульса молекулы, равного сумме моментов электронов и орбитального момента ядер.

Из условий $n_i n_i = 1$, $(\hat{K}_n^2) = \Lambda^2$ (Λ - проекция электронного момента молекулы на ось) находим

$$a_K = -\frac{1}{4K(K+1)-3} (1-d_K), \quad b_K = \frac{1}{3} (1-2d_K K(K+1)),$$

$$d_K = \frac{3\Lambda^2}{K(K+1)}. \quad (45)$$

После несложных преобразований мы можем написать:

$$U_{nK} = \pm [\bar{C}_n + \bar{D}_n \{ 2b_K + 2d_K (\overset{\uparrow\downarrow}{SK})^2 + d_K (\overset{\uparrow\downarrow}{SK}) \}]. \quad (46)$$

Собственные значения этой матрицы зависят от полного момента импульса молекулы $\overset{\uparrow\downarrow}{J} = \overset{\uparrow\downarrow}{K} + \overset{\uparrow\downarrow}{S}$. Окончательно, для сдвига энергии и измерения ширины ядерных уровней в двухатомной молекуле мы получим следующее выражение:

$$\Delta E_{KJn} - \frac{1}{2} \hbar \Delta \gamma_{KJn} = \pm [\bar{C}_n + \bar{D}_n L_{JK}]. \quad (47)$$

Если $K \gg 1 \approx 1$, $L_{K+1,K} \approx L_{K-1,K} = \frac{1}{2}$, $L_{K,K} = 1$. В случае $\Lambda = 0$:

$$L_{K+1,K} = \frac{1}{2} + \frac{K - \frac{1}{2}}{4K(K+1) - 3}, \quad (48)$$

$$L_{K-1,K} = \frac{1}{2} - \frac{K + \frac{1}{2}}{4K(K+1) - 3}, \quad (K \neq 0)$$

$$L_{KK} = 1$$

Так же, как и в случае неподвижных центров, отличие от нуля величины $\Delta \gamma_{KJn}$ обусловлено явлением интерференции при γ -распаде коллективных состояний двух ядер А и В, связанных полем излучения. Заметим, что изменение ширины $\Delta \gamma_{KJn}$ включает в себя интерференционные эффекты от γ -переходов молекулы ВА, находящейся в состоянии с квантовыми числами nKJ , во все возможные состояния молекулы с двумя тождественными ядрами А.

Согласно (47), резонансное взаимодействие между ядрами А и В, наряду с обычным квадрупольным взаимодействием ядра с электронами молекулы, приводит к сверхтонкому расщеплению молекулярных уровней. При этом каждой компоненте сверхтонкой структуры соответствует свое время жизни. Кроме того, рассмотренное нами взаимодействие ядер вносит существенный вклад в расщепление "положительных" и "отрицательных" уровней молекулы при $\Lambda \neq 0$ (Λ - удвоение^x): компоненте дублета с четной функцией $\phi_{nK}(\vec{R})$ соответствует знак (+), а компоненте дублета с нечетной функцией $\phi_{nK}(\vec{R})$ соответствует знак (-) в формуле (47). В случае Σ -термов ($\Lambda = 0$) при четных значениях К х) "Положительным" и "отрицательным" уровням молекулы с близкими по массе ("почти" тождественными) ядрами, относящимися к одному и тому же изотопу, соответствуют вращательные состояния с определенной симметрией.

формулу (47) следует писать со знаком (+), при нечетных значениях K - со знаком (-).

Оценим величину указанных нами эффектов. Известно, что $\Delta\omega_{\text{кол}} \approx 10^{18} \left(\frac{m_e}{M}\right)^{1/2}$, $\Delta\omega_{\text{вр}} = 10^{16} \text{сек}^{-1} K \frac{m_e}{M}$, $a_{\text{кол}} \approx 10^{-8} \text{см} \left(\frac{m_e}{M}\right)$, $R \approx 10^{-8} \text{см}$ (m_e - масса электрона). Пусть $m_e/M \approx 10^{-5}$, $K \approx 10$ (что соответствует температуре 300°K). Тогда из соотношения (39) - (41) следует, что формула (47) справедлива при условии:

$$10^{22} \text{сек}^{-1} \gg \omega_0 \gg 3 \cdot 10^{13} \text{сек}^{-1} (\approx 0,03 \text{эв})$$

$$\gamma \ll 10^{12} \text{сек}^{-1} (\approx 10^{-3} \text{эв}).$$

Легко видеть, что величины \bar{C}_n и \bar{D}_n в формулах (43) становятся экспоненциально малыми ($\sim \exp\left(-\frac{\hbar^2 n \omega_0^2}{2c^2 M \omega_{\text{кол}}}\right)$), если $\frac{\omega_0 R_0}{c} > 1$. Таким образом, если вероятность возбуждения колебательных уровней молекулы при γ -распаде (включая диссоциацию) близка к единице, все рассмотренные выше эффекты, как и следовало ожидать, исчезают. Следовательно, мы должны ограничиться частотами γ -излучения

$$\omega_0 \lesssim \frac{c}{a_{\text{кол}}} \sim 10^{20} \text{сек}^{-1} (\sim 60 \text{кэв}). \quad (49)$$

Из соотношений (31), (43) и (47) следует, что при $\frac{\omega_0 R_0}{c} \geq 1$ ($3 \text{кэв} < \hbar\omega_0 < 60 \text{кэв}$)

$$\Delta E_{njk} \sim \hbar \Delta \gamma_{njk} \sim \hbar \gamma \frac{c}{\omega_0 R_0}. \quad (50)$$

Заметим, что величина γ в формулах (50) и (31) равна радиационной ширине возбужденного ядра. С учетом внутренней конверсии электронов

$$\Delta E_{njk} \sim \hbar \Delta \gamma_{njk} \sim \hbar \frac{\gamma_{\text{полн}}}{1 + a_{\text{конв}}} \frac{c}{\omega_0 R_0}, \quad (51)$$

где $a_{\text{конв}}$ - коэффициент внутренней конверсии, $\gamma_{\text{полн}} = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}$, $T_{1/2}$ - период полураспада возбужденного ядра в изолированном атоме.

Согласно (51), $\frac{\omega_0 R_0}{c} > 1$ (этому требованию удовлетворяют все известные γ -переходы), поправки к энергетическим уровням молекулы очень малы^{х)}. Следует, однако, отметить, что при $\gamma > 10^{-6}$ сек⁻¹ резонансное взаимодействие между ядрами вносит основной вклад в расщепление Π -термов молекулы. Наибольший интерес представляет зависимость времени жизни возбужденного ядра от квантовых чисел молекулы. Например, в случае молекулы $\text{Br}^{*80}\text{Br}^{80}$ (E1 - переход с энергией 37 кэв, $T_{1/2} \approx 4 \cdot 10^{-9}$ сек^{/11/}, $\alpha_{\text{конв}} \approx 1,5$) относительная разница времен жизни для Σ -состояний с вращательными моментами K и $K+1$ составляет примерно 5%. Эффекты такого рода в принципе могут быть замечены экспериментально.

Заметим, что хотя мы рассмотрели лишь случай E1-перехода между состояниями со спинами $S_A = 0$ и $S_B = 1$, основные выводы настоящей работы, включая оценки (50) - (51), остаются в силе при любых значениях спинов S_A и S_B и при любой мультипольности γ -излучения. При этом речь может идти не только о двухатомных молекулах (со свободными или с ориентированными осями), но и о любых химических соединениях, в состав которых входят два одинаковых атома (вообще говоря, таких атомов может быть несколько), ядра которых обладают низлежащими возбужденными уровнями. Известно несколько десятков "мессбауэровских" γ -переходов с энергией меньше 60-70 кэв^{/11/}. В частности, можно ожидать, что в соединениях $\text{Fe}^{*57}\text{Fe}^{57}\text{O}_3$ (M1-E2 переход с энергией 14 кэв, $T_{1/2} = 1,14 \cdot 10^{-8}$ сек, $\alpha_{\text{конв}} = 15$), $\text{Al}^{*28}\text{Al}^{28}(\text{SO}_4)_3$ (M1-E2) переход с энергией 31 кэв, $T_{1/2} = 2,3 \cdot 10^{-9}$ сек, $\alpha_{\text{конв}} = 2$), $\text{As}^{*72}\text{As}^{72}$ - переход с энергией 48 кэв, $T_{1/2} = 1,5 \cdot 10^{-8}$ сек, $\alpha_{\text{конв}} \approx 1$), эффект изменения времени жизни возбужденного ядра достигает 1-5% (мы пользуемся данными таблиц^{/11,12/}).

Автор выражает глубокую благодарность М.И. Подгорецкому за внимание к работе и ценные обсуждения.

х) При $\frac{\omega_0 R_0}{c} < 1$

$$\Delta E_{n,jk} \sim \gamma \left(\frac{c}{\omega_0 R_0} \right)^3, \text{Im } C_n \sim \gamma, \text{Im } D_n \sim \gamma \left(\frac{\omega_0 R_0}{c} \right)^2$$

Л и т е р а т у р а

1. В.Л. Любошиц. ЖЭТФ, 52, 928 (1967).
В.Л. Любошиц. Препринт ОИЯИ Р-2896, 1966.
2. М.И. Подгорецкий, И.И. Ройзен. ЖЭТФ, 39, 1473 (1960).
3. В.М. Файн, Я.И. Ханян. Квантовая радиофизика, 1965.
4. В. Паули. Общие принципы волновой механики, Гостехиздат, 1947.
5. Л.Д. Ландау и Е.М. Лифшиц. Теория поля, ГИФМЛ, 1960.
6. А.И. Ахлезер и В.Б. Берестецкий. Квантовая электродинамика, Физматгиз, 1959.
7. А.С. Давыдов. ЖЭТФ, 18, 210, (1948).
8. М.И. Широков. Ядерная физика, 4, 1077 (1966).
9. А.Б. Мигдал, В.П. Крайнов. Приближенные методы квантовой механики, Изд-во "Наука", 1966.
10. Л.Д. Ландау и Е.М. Лифшиц. Квантовая механика, ГИФМЛ, 1963.
11. Возмущенные угловые корреляции, под ред. Э. Карлесона, Э. Маттиаса, К. Зигбана, Приложение 2, Атомиздат, 1966.
12. Гамма-лучи под ред. Л.А. Слива, гл. 4, Приложение 1, АН СССР, Физико-технический институт им. А. Иоффе, 1961.

Рукопись поступила в издательский отдел
24 апреля 1967 г.