

ЧЕТЫРЕХВОЛНОВОЕ СМЕШЕНИЕ В УСЛОВИЯХ БЕЗДОПЛЕРОВСКОГО РЕЗОНАНСА, ИНДУЦИРОВАННОГО СИЛЬНЫМИ ИЗЛУЧЕНИЯМИ

A.K.Попов¹⁾, A.C.Баев

Институт физики Сибирского отделения РАН

Красноярский государственный технический университет
660036 Красноярск, Россия

Поступила в редакцию 11 декабря 1998 г.

Исследованы возможности увеличения нелинейно-оптического отклика газообразной среды и эффективности преобразования излучения в процессах четырехвольнового смешения за счёт эффектов атомной когерентности и индуцированного устранения доплеровского уширения резонансов. Приведены численные иллюстрации эффектов применительно к проводимым экспериментам.

PACS: 42.50.-p, 42.65.-k

1. Экспериментальному и теоретическому исследованиям процессов резонансно-когерентного взаимодействия электромагнитных полей на квантовых переходах уделяется большое внимание (см., например, [1,2]). Это объясняется благоприятными возможностями изучения квантовых интерференционных явлений, которые, в свою очередь, лежат в основе манипулирования нелинейно-оптическими свойствами атомно-молекулярных систем и резонансного преобразования лазерных излучений. Значительно меньшее количество публикаций посвящено особенностям когерентного взаимодействия на доплеровски уширенных переходах, которые оказывают существенное влияние на проявления указанных процессов. Целью работы является показать, что с помощью дополнительных сильных полей и атомной когерентности можно сформировать новые резонансы в нелинейной восприимчивости, свободные от доплеровского уширения. При этом, несмотря на одновременное увеличение поглощения исходных излучений, достигается значительный рост квантовой эффективности преобразования. Для численных иллюстраций использована модель, соответствующая условиям экспериментов [1]. Элементарные физические процессы, лежащие в основе предлагаемого метода и состоящие в изменении частотно-корреляционных свойств многофотонных процессов в сильных электромагнитных полях, более подробно обсуждаются в [3].

2. Рассмотрим схему взаимодействия, представленную на рис.1. Волна $E_3(t, r)$, взаимодействующая с переходом 2–3, состоит из двух компонент, $E_3^+(t, r)$ и $E_3^-(t, r)$, с одинаковыми частотами, но противоположными направлениями распространения. Волновой вектор компоненты E_3^+ параллелен волновым векторам k_1 и k_2 , а вектор компоненты E_3^- – антипараллелен. Предполагается, что заселен только нижний уровень, а поле излучения на переходе 0–1 является столь слабым, что можно пренебречь изменением его населённости. Компонента E_3^+ поля на частоте ω_3 также является слабой, а компонента E_3^- и поле E_2 , взаимодействующее с переходом 1–2, могут быть произвольной интенсивности.

¹⁾ e-mail: popov@cc.krascience.rssi.ru

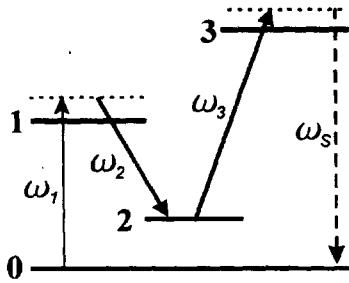


Рис.1. Схема резонансного четырёхволнового взаимодействия

Система уравнений матрицы плотности в представлении взаимодействия имеет вид

$$\begin{aligned} L_{03}\rho_{03} &= i\{\rho_{00}V_{03} + \rho_{02}(V_{23}^+ + V_{23}^-)\}, \quad L_{01}\rho_{01} = i\{\rho_{00}V_{01} + \rho_{02}V_{21}\}, \\ L_{02}\rho_{02} &= i\{\rho_{01}V_{12} + \rho_{03}(V_{32}^+ + V_{32}^-)\}, \end{aligned} \quad (1)$$

где $L_{ij} = \partial/\partial t + \mathbf{v}\nabla + \Gamma_{ij}$, $V_{ij} = G_{ij} \exp\{i(\Omega_i t - k_i z)\}$, $V_{23}^\pm = G_{23}^\pm \exp\{i(\Omega_3 t \mp k_3 z)\}$, $G_{ij} = -E_j d_{ij}/2\hbar$, $G_{23}^\pm = -E_3^\pm d_{23}/2\hbar$ - характеризующие взаимодействие частоты Раби, Ω_i - выход из резонанса для соответствующего резонансного поля (например, $\Omega_1 = \omega_1 - \omega_{01}$), Γ_{ij} - однородные полуширины переходов.

Таким образом, наведённая атомная когерентность ρ_{02} является источником новых компонент в поляризациях, отвечающих за поглощение и генерацию излучений. Представим недиагональные элементы ρ_{01} , ρ_{02} и ρ_{03} в виде произведения амплитудного и фазового множителей: $\rho_{01} = r_{01} \exp\{i(\Omega_1 - k_1 z)\} + \bar{r}_{01} \exp\{i[\Omega_1 t - (k_2 + k_3 + k_4)z]\}$, $\rho_{02} = r_{02} \exp\{i[(\Omega_1 - \Omega_2)t - (k_1 - k_2)z]\} + \bar{r}_{02} \exp\{i[(\Omega_1 - \Omega_2)t - (k_3 + k_4)z]\}$, $\rho_{03} = r_{03} \exp\{i[\Omega_4 t - k_4 z] + \bar{r}_{03} \exp\{i[(\Omega_1 - \Omega_2 + \Omega_3)t - (k_1 - k_2 + k_3)z]\} + \bar{r}_{03} \exp\{i[(\Omega_1 - \Omega_2 + \Omega_3)t - (k_1 - k_2 - k_3)z]\}$. Подставляя эти выражения в (1) и решая систему алгебраических уравнений для амплитуд недиагональных элементов матрицы плотности, получим выражения для недиагонального элемента r_{03} , характеризующего поглощение и преломление волны E_4 в присутствии сильных полей E_2 и E_3^- , и для недиагонального элемента \bar{r}_{03}^+ , отвечающего за нелинейную поляризацию и восприимчивость на генерируемой частоте $\omega_S = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$:

$$r_{03} = i \frac{G_{03}}{P_{03}} \frac{P_{01}^- P_{02}^- + |G_{12}|^2}{P_{01}^- \{P_{02}^- + |G_{23}^-|^2/P_{03} + |G_{12}|^2/P_{01}^-\}}, \quad (2)$$

$$\bar{r}_{03}^+ = r_{01} \frac{G_{12} G_{23}^+}{P_{02}^+ P_{03}^+} \frac{1}{1 + |G_{23}^-|^2/P_{03}^- P_{02}^-} \frac{1}{1 + |G_{23}^-|^2/P_{03}^+ P_{02}^+}, \quad (3)$$

где $P_{02} = \Gamma_{02} + i[\Omega_1 - \Omega_2 - (k_1 - k_2)v]$, $P_{02}^- = \Gamma_{02} + i[\Omega_1 - \Omega_2 - (k_3 + k_4)v]$, $P_{03} = \Gamma_{03} + i(\Omega_4 - k_4 v)$, $P_{03}^- = \Gamma_{03} + i(\Omega_1 - \Omega_2 + \Omega_3 - k_S^- v)$, $P_{03}^+ = \Gamma_{03} + i(\Omega_1 - \Omega_2 + \Omega_3 - k_S^+ v)$, $P_{01}^- = \Gamma_{01} + i[\Omega_1 - (k_2 + k_3 + k_4)v]$, $k_S^- = k_1 - k_2 - k_3$, $k_S^+ = k_1 - k_2 + k_3$, v – проекция скорости атома на направление z .

Решение для недиагонального элемента r_{01} , характеризующее поглощение и преломление волны E_1 в присутствии сильных полей E_2 и E_3^- , имеет вид [4]

$$r_{01} = -i \frac{G_{01}}{P_{01}} \frac{P_{02}^- P_{03}^- + |G_{23}^-|^2}{P_{03}^- \{P_{02}^- + |G_{23}^-|^2/P_{03}^- + |G_{12}|^2/P_{01}\}}, \quad (4)$$

где $P_{01} = \Gamma_{01} + i(\Omega_1 - k_1 v)$. Воспользовавшись им, в нижайшем порядке теории возмущений по G_{23}^+ получаем из (3) решение для недиагонального элемента \tilde{r}_{03}^+ :

$$\tilde{r}_{03}^+ = \frac{i}{P_{01}} \frac{G_{01} G_{12} G_{23}^+}{(P_{02} + |G_{23}^-|^2/P_{03}^- + |G_{12}|^2/P_{01})(P_{03}^+ + |G_{23}^-|^2/P_{02}^+)}. \quad (5)$$

С увеличением интенсивности взаимодействующих излучений нелинейная поляризация сначала растёт, а затем испытывает насыщение. Чем выше интенсивность, тем при больших расстройках резонансов и при больших значениях поляризации достигается насыщение. Для лазеров непрерывного действия характерны интенсивности, которым соответствуют резонансные или квазирезонансные оптимальные условия. При этом в газообразных средах, обладающих наиболее резкими и сильными резонансами по сравнению с конденсированными средами, из-за доплеровских эффектов лишь небольшая часть атомов оказывается в одном из резонансов.

Покажем, что с помощью рассматриваемых эффектов это ограничение может быть преодолено. При отстройках от невозмущённых резонансов, существенно превышающих соответствующие доплеровские ширины, $|G|^2/P \approx |G|^2/p - ikv|G|^2/p^2$, где p – соответствующие факторы P при $v = 0$. Таким образом, наряду со сдвигом и уширением резонансов сильные поля индуцируют дополнительные доплеровские сдвиги [3,5]. Принимая во внимание, что $\text{Re}\{|G|^2/p^2\} < 0$, $k_S^- < 0$, из (5) следует возможность полной компенсации доплеровских сдвигов и устранения неоднородного уширения модифицированного сильными полями двухфотонного резонанса. При этом в результате одновременного захвата всех атомов в указанный резонанс, независимо от их скорости, можно ожидать значительного увеличения нелинейной восприимчивости и одновременного уменьшения насыщения нелинейной поляризации. С помощью указанной процедуры сомножитель в знаменателе (5), описывающий модифицированный двухфотонный резонанс, можно представить в виде

$$\begin{aligned} \tilde{P}_{02} &\equiv P_{02} + |G_{12}|^2/P_{01} + |G_{23}^-|^2/P_{03}^- \approx \\ &\approx \tilde{\Gamma}_{02} + i\tilde{\Omega}_{02} - i \left\{ \left(1 + \frac{|G_{23}^-|^2}{\Omega_4^2} \right) (k_1 - k_2) + \frac{|G_{12}|^2}{\Omega_1^2} k_1 - \frac{|G_{23}^-|^2}{\Omega_4^2} k_3 \right\} v, \end{aligned} \quad (6)$$

где $\tilde{\Gamma}_{02}$ и $\tilde{\Omega}_{02}$ – полуширина и положение резонанса с учетом полевых уширения и сдвига. Из (6) следуют условия устраниния зависимости от v и, следовательно, доплеровского уширения индуцированного резонанса.

Подчеркнём, что все рассматриваемые здесь и в дальнейшем эффекты никак не связаны с движением заселённостей, а являются следствием возникновения когерентных суперпозиций квантовых состояний, обусловленных модуляцией волновых функций в сильных полях [3]. Это находит отражение в возникновении бегущих волн когерентности (описываемых недиагональными элементами матрицы плотности) на запрещённых переходах и в модификации их спектральных зависимостей.

В отличие от рассмотренных в [3] процессов поглощения и преломления, где относительные направления распространения взаимодействующих волн могут быть любыми, процессы смешения частот требуют волнового синхронизма. Это диктует лишь параллельные направления распространения параметрически взаимодействующих волн. Сильная встречная волна E_3^- непосредственно не участвует в процессе преобразования фотонов. Она лишь возмущает квантовую систему. Эффект можно интерпретировать и как вклад резонансных процессов более высокого порядка, в

которых число испускаемых и поглощаемых встречных фотонов одинаково, так что это не приводит к нарушению сохранения импульса для преобразуемых фотонов. С помощью встречной волны можно манипулировать резонансами системы и степенью их неоднородного уширения и таким образом улучшать преобразование излучений при правильном выборе их интенсивности и частоты.

В отличие от каскадных схем, для переходов типа комбинационного рассеяния k_1 всегда больше k_2 . При этом индуцированное устранение доплеровского уширения квазидвухфотонного перехода за счет сильного поля E_2 невозможно. Предлагаемый метод, основанный на использовании дополнительной встречной волны E_3^- , позволяет преодолеть это ограничение.

3. Проиллюстрируем результаты усреднения с максвелловским распределением по скоростям и влияние эффекта устранения доплеровского уширения индуцированных резонансов на поглощение и нелинейную восприимчивость. Для численного анализа используем параметры переходов молекулы димера натрия со следующими длинами волн [1]: $\lambda_{01} = 661$ нм, $\lambda_{12} = 746$ нм, $\lambda_{23} = 514$ нм и $\lambda_{03} = 473$ нм. Соответствующие однородные полуширины переходов равны 20.69, 23.08, 18.30 и 15.92 МГц, а доплеровские полуширины – 0.678, 0.601, 0.873 и 0.948 ГГц.

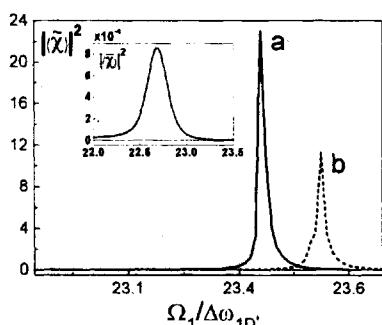


Рис.2. Бездоплеровский резонанс в нелинейной восприимчивости, индуцированный сильным излучением встречной волны. $\langle \tilde{\chi} \rangle$ – усреднённое по скоростям значение нормированной нелинейной восприимчивости: а – в условиях полной компенсации доплеровского уширения перехода 0–2, б – в условиях частичной компенсации, $\langle \tilde{\chi} \rangle$ – то же в отсутствии встречной волны

На рис.2 представлена зависимость нормированного квадрата модуля усреднённой по скоростям нелинейной восприимчивости ($\tilde{\chi}$), который определяет четырехвольновое взаимодействие излучений, от нормированной на доплеровскую полуширину своего перехода ($\Delta\omega_{1D}$) отстройки пробного поля. Нормировка выполнена на значение этой же величины в рассматриваемой области частот в отсутствие встречной волны. Сильное поле встречной волны приводит к значительному сдвигу и сужению резонанса в нелинейной восприимчивости. Это следует из сравнения с кривой на врезке, представляющей спектральную зависимость этой же величины в отсутствие встречной волны и нормированной на соответствующее значение при одновременных точных одно- и многофотонных резонансах в исчезающе слабых полях. Частота Раби и отстройка поля E_2 равны соответственно 2.35 ГГц и 18.46 ГГц (27.2· $\Delta\omega_{1D}$), отстройка поля E_3^- равна 1.83 ГГц (2.7· $\Delta\omega_{1D}$). Кривой а соответствует оптимальная частота Раби поля E_3^- , при которой устраняется доплеровское уширение перехода 0–2: 0.89 ГГц. Для кривой б значение частоты Раби больше оптимального: 1.06 ГГц. Полуширина резонанса на врезке составляет приблизительно 80 МГц, что соответствует доплеровской ширине невозмущённого рамановского перехода, резонанса а – 7.8 МГц, б – 8.4 МГц.

Формулы для показателей поглощения имеют вид

$$\alpha_1(\Omega_1) = \alpha_{01} \operatorname{Re} \left\{ \frac{\Gamma_{01}}{P_{01}} \frac{P_{02} P_{03}^- + |G_{23}^-|^2}{P_{03}^- \{P_{02} + |G_{23}^-|^2/P_{03}^- + |G_{12}|^2/P_{01}\}} \right\}, \quad (7)$$

$$\alpha_3(\Omega_S) = \alpha_{03} \operatorname{Re} \left\{ \frac{\Gamma_{03}}{P_{03}} \frac{P_{01}^- P_{02} + |G_{12}|^2}{P_{01}^- \{P_{02}^- + |G_{23}^-|^2/P_{03}^- + |G_{12}|^2/P_{01}^-\}} \right\}. \quad (8)$$

Анализ этих усреднённых по скоростям выражений показывает, что максимумы поглощения и нелинейной восприимчивости как функции Ω_1 не совпадают.

4. Рассмотрим совместное влияние индуцированных бездоплеровских резонансов в поглощении и нелинейной поляризации на генерацию излучения. Решение ищем в виде

$$E^j(z, t) = \operatorname{Re}\{E_j(z) \exp[i(\omega_j t - k_j z)]\}, \quad (9)$$

где k_j – комплексное волновое число на соответствующей частоте: $k_j = k'_j - i\alpha_j/2$.

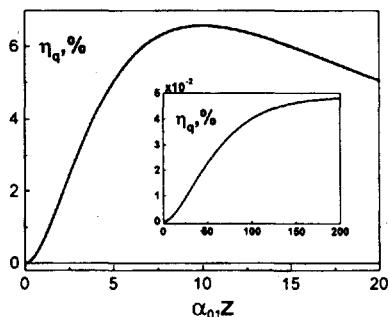


Рис.3. Увеличение квантовой эффективности преобразования излучения E_1 в E_S за счёт индуцированного бездоплеровского резонанса ($\alpha_{01}z$ – оптическая толщина среды на частоте ω_{01})

Ограничимся случаем относительно малых коэффициентов преобразования, когда поля E_2 и E_3^\pm можно считать постоянными по среде, а для E_1 учитывать лишь экспоненциальное поглощение. Тогда укороченное уравнение для $E_S(z)$ имеет вид

$$dE_S(z)/dz = i2\pi k'_S \chi_S^{(3)} E_1(0) E_2^* E_3 \exp(-i\Delta kz), \quad (10)$$

где $\chi_S^{(3)}$ – исследованная выше эффективная нелинейная восприимчивость для четырёхволнового параметрического процесса $\omega_S = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$, $\Delta k = k_S - k_1 + k_2 - k_3$. Квантовая эффективность преобразования (КЭП) излучения E_1 в E_S на выходе из среды определяется формулой

$$\eta_q = (\omega_1/\omega_S) |E_S(z)/E_1(0)|^2 \exp(-\alpha_S z). \quad (11)$$

Из (10) получаем

$$\eta_q(z) = (\omega_1/\omega_S) (|2\pi \chi_S^{(3)} E_2 E_3|^2 / |\Delta k|^2) \exp(-\alpha_S z) |\exp(-i\Delta kz) - 1|^2 \quad (12)$$

На рис.3 представлена зависимость КЭП от оптической толщины среды при отстройке пробного поля, соответствующей пику нелинейной восприимчивости в условиях фазового согласования ($\Delta k' = 0$) и компенсации доплеровского уширения перехода 0–2. При расчёте использовались соотношения факторов Франка – Кондона

для рассматриваемых переходов димера натрия. На врезке представлена та же зависимость, но при $E_3^- = 0$, когда условия устранения доплеровского уширения не выполнены. Из сопоставления этих кривых видно значительное увеличение эффективности преобразования, что и отвечает поставленной в данной работе задаче.

Работа выполнена при финансовой поддержке Минобразования РФ (грант по исследованиям в области фундаментального естествознания) и Российского фонда фундаментальных исследований (гранты 97-02-00016G и 97-02-16092).

-
1. S.Babin, U.Hinze, E.Tiemann, and B.Welleghausen, Opt. Lett. **21**, 1186 (1996).
 2. M.D.Lukin et al., Phys. Rev. Lett. **81**, 2675 (1998).
 3. А.С.Баев и А.К.Попов, Письма в ЖЭТФ **67**, 964 (1998); A.K.Popov and V.M.Shalaev, Phys. Rev. A.(1999) (to be published); Т.Я.Попова, А.К.Попов, С.Г.Раутиан, А.А.Феоктистов, ЖЭТФ **57**, 444 (1969).
 4. А.К.Попов, Известия РАН, физика **60**, 99 (1996).
 5. C.Cohen-Tannoudji, et al., Opt. Comm. **27**, 71(1978); S.Reynaud, et al., Phys. Rev. Lett. **42**, 756 (1979); S.Reynaud et al., Opt. Comm. **42**, 39 (1982); G.Vernuri, G.S.Agarwal, and B.Rao, Phys. Rev. **A53**, 2842 (1996).