

ОБ ИЗМЕНЕНИИ ЗНАКА СУБНАТУРАЛЬНОГО НЕЛИНЕЙНОГО РЕЗОНАНСА ЗА СЧЕТ СПОНТАННОГО ПЕРЕНОСА КОГЕРЕНТНОСТИ

А.В.Тайченачев¹⁾, А.М.Тумайкин, В.И.Юдин

Новосибирский государственный университет
630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 20 апреля 1999 г.

Предложена простая теоретическая модель, описывающая положительный знак нелинейных резонансов в поглощении в экспериментах Акульшина и др. [Phys. Rev. **A57**, 2996 (1998)]. В пределе малого насыщения получено аналитическое выражение для линейного отклика к слабому пробному полю. Показано, что положительный знак резонансов с шириной меньше естественной обусловлен спонтанным переносом низкочастотной когерентности с возбужденного уровня на основной.

PACS: 42.50.Gy

1. Хорошо известно, что эффекты нелинейной интерференции при резонансном взаимодействии атомов со светом могут приводить к таким интересным и важным явлениям, как электромагнитно индуцированная прозрачность [1], когерентное пленивание населенностей [2], безинверсное усиление и генерация [3] и др.. Общим для всех этих явлений является возникновение светоиндуцированной когерентности между атомными уровнями на дипольно запрещенном переходе. Недавно были наблюдаемы [4] нелинейные резонансы с шириной, меньше естественной, в поглощении на линии D_2 рубидия при возбуждении двумя сонаправленными оптическими волнами с переменной разностью частот. Замечательно, что, кроме ожидаемых резонансов электромагнитно индуцированной прозрачности с отрицательным знаком, были зафиксированы положительные резонансы, описывающие значительный рост поглощения. Позднее авторы работы [4], основываясь на экспериментальных результатах и численных расчетах, пришли к выводу [5], что положительные субнатуральные резонансы поглощения возникают в вырожденной двухуровневой системе при выполнении трех условий: 1) полный угловой момент возбужденного уровня должен быть больше момента основного: $F_e = F_g + 1$; 2) переход $F_g \rightarrow F_e$ должен быть замкнутым и 3) основной уровень должен быть вырожден, $F_g > 0$. Однако физические причины изменения знака резонанса остались, на наш взгляд, невыясненными.

В то же время, как было показано в [6], спонтанный перенос зеемановской когерентности с возбужденного уровня на основной (спонтанный каскад когерентности) может приводить к изменениям положения, ширины и, что в данном контексте наиболее важно, амплитуды нелинейных резонансов в спектроскопии пробного поля. Представляется вероятным, что именно этот процесс ответственен за изменение знака резонанса в [4]. Отметим, что простые теоретические модели (Λ -атом, V -атом и др.), обычно используемые при описании эффектов нелинейной интерференции, не учитывают спонтанный каскад когерентности. Исключение составляют, по всей видимости, работы Раутиана по спонтанному переносу оптической когерентности (см. [7] и приведенные там ссылки).

¹⁾ e-mail: llf@admin.nsu.ru

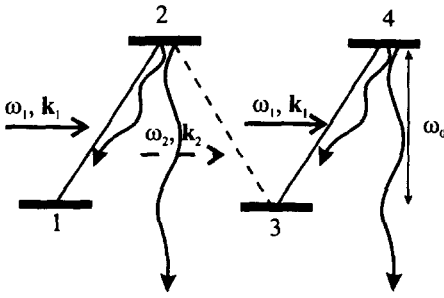


Рис.1. N -атом. Светоиндуцированные переходы изображены сплошной (поле накачки) и штриховой (пробное поле) линиями. Волнистые линии показывают два возможных канала спонтанного распада низкочастотной когерентности

2. В настоящей работе предложена простая теоретическая модель, допускающая спонтанный перенос низкочастотной когерентности и описывающая положительный знак нелинейных резонансов в поглощении – N -атом. А именно, мы рассматриваем атомную систему, имеющую четыре состояния $|i\rangle$, $i = 1 \dots 4$ (см. рис.1). Нечетные состояния $|1\rangle$ и $|3\rangle$ принадлежат к основному нерелаксирующему уровню с нулевой энергией. Четные состояния $|2\rangle$ и $|4\rangle$ формируют возбужденный уровень с энергией $\hbar\omega_0$ скоростью спонтанной релаксации Γ . Все оптические переходы $|odd\rangle \rightarrow |even\rangle$ разрешены, за исключением $|1\rangle \rightarrow |4\rangle$, который запрещен вследствие некоторого правила отбора (например, по проекции углового момента). N -атом резонансно взаимодействует с двухчастотным световым полем:

$$I(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_1 \exp[-i\omega_1 t + i(\mathbf{k}_1 \mathbf{r})] + \mathbf{E}_2 \exp[-i\omega_2 t + i(\mathbf{k}_2 \mathbf{r})] + \text{c.c.} \quad (1)$$

Поле накачки с амплитудой \mathbf{E}_1 и частотой ω_1 возбуждает одновременно два перехода: $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ и $|3\rangle \rightarrow |4\rangle$. Слабое пробное поле \mathbf{E}_2 на частоте ω_2 прикладывается к переходу $|3\rangle \rightarrow |2\rangle$. Во вращающемся вместе с полем базисе гамильтониан свободного атома можно представить в виде

$$\hat{H}_0 = \hbar\delta_1 |1\rangle\langle 1| + \hbar\delta_2 |3\rangle\langle 3| + \hbar(\delta_2 - \delta_1) |4\rangle\langle 4|, \quad (2)$$

где $\delta_q = \omega_q - \omega_0 - (\mathbf{k}_q \mathbf{v})$ ($q = 1, 2$) – отстройки с учетом доплеровских сдвигов. Для оператора взаимодействия используем резонансное приближение ($|\delta_q| \ll \omega_q$)

$$\hat{H}_{AF} = \hbar\Omega_1 \hat{Q}_1 + \hbar\Omega_2 \hat{Q}_2 + \text{h.c.} \quad (3)$$

Здесь Ω_q – частоты Раби, а операторы \hat{Q}_q заданы следующим образом:

$$\begin{aligned} \hat{Q}_1 &= A|2\rangle\langle 1| + |4\rangle\langle 3|, \\ \hat{Q}_2 &= B|2\rangle\langle 3|, \quad A^2 + B^2 = 1, \end{aligned} \quad (4)$$

где реальные числа A и B определяют относительные амплитуды переходов (амплитуду перехода $|3\rangle \rightarrow |4\rangle$ полагаем равной 1). В приближении чисто радиационной релаксации кинетическое уравнение для матрицы плотности атомов $\hat{\rho}$ имеет вид

$$\frac{d}{dt} \hat{\rho} + \frac{i}{\hbar} [\hat{H}_0 + \hat{H}_{AF}, \hat{\rho}] + \frac{1}{2} \Gamma \left\{ \sum_{q=1,2} \hat{Q}_q \hat{Q}_q^\dagger, \hat{\rho} \right\} - b\Gamma \sum_{q=1,2} \hat{Q}_q^\dagger \hat{\rho} \hat{Q}_q = \hat{R}, \quad (5)$$

где третий член в левой части, имеет структуру антикоммутатора, описанного состояния и оптических когерентностей. Последний член в левой части соответствует

переносу населенности и низкочастотной когерентности с возбужденного уровня на основной. Коэффициент ветвления $0 \leq b \leq 1$ задает вероятность того, что атом после возбуждения вернется на исходный уровень. В частности, в случае замкнутого перехода имеем $b = 1$. Правая часть (5) представляет собой источник, описывающий внешнюю накачку уровней.

3. Как хорошо известно [8], работа, производимая пробным полем в единицу времени, определяется выражением $P = 2\hbar\omega_2 \text{Re}\{i\Omega_2^* \rho_{23}\}$. При этом положительный знак P соответствует поглощению излучения средой.

Стационарная оптическая когерентность ρ_{23} может быть записана в виде

$$\rho_{23} = [\Gamma/2 - i\delta_2]^{-1} \{-iB\Omega_2(\rho_{33} - \rho_{22}) - iA\Omega_1\rho_{13} + i\Omega_1\rho_{24}\}. \quad (6)$$

Два последних члена в фигурных скобках в (6) (пропорциональные Ω_1) описывают изменения в поглощении, обусловленные светоиндуцированной низкочастотной когерентностью.

В случаях Λ -атома и V -атома недиагональные элементы ρ_{13} и ρ_{24} имеют такие фазы, что поглощение пробного поля убывает при двухфотонном резонансе $\delta_2 = \delta_1$. Отметим, что соответствующие слагаемые имеют противоположные знаки. В рассматриваемом случае в уравнении для ρ_{13} возникает дополнительный член, обусловленный спонтанным каскадом $\rho_{24} \rightarrow \rho_{13}$ ($d\rho_{13}/dt = \dots + bA\Gamma\rho_{24}$). Следовательно, фаза когерентности ρ_{24} , дающая прозрачность через слагаемое $i\Omega_1\rho_{24}$, может дать рост поглощения через слагаемое $-iA\Omega_1\rho_{13}$. В дальнейшем мы используем два стандартных приближения: 1) первый порядок по амплитуде пробного поля Ω_2 ; 2) предел слабого насыщения по полю накачки, то есть $\Omega_1 < \Gamma$. Тогда, вместо (6), запишем

$$\rho_{23}^{(1)} = [\Gamma/2 - i\delta_2]^{-1} \{-iB\Omega_2\rho_{33}^{(0)} - iA\Omega_1\rho_{13}^{(1)}\}, \quad (7)$$

где индекс над $\rho^{(n)}$ означает, что этот элемент взят в n -ом порядке по Ω_2 . Уравнение (7) дополняется следующими уравнениями для когерентностей первого порядка:

$$\begin{aligned} i(\delta_1 - \delta_2)\rho_{13}^{(1)} &= iB\Omega_2\rho_{12}^{(0)} - iA\Omega_1^*\rho_{23}^{(1)} + i\Omega_1\rho_{14}^{(1)} + bA\Gamma\rho_{24}^{(1)}, \\ [\Gamma + i(\delta_1 - \delta_2)]\rho_{24}^{(1)} &= -iB\Omega_2\rho_{34}^{(0)} - iA\Omega_1\rho_{14}^{(1)} + i\Omega_1^*\rho_{23}^{(1)}, \\ [\Gamma/2 + i(2\delta_1 - \delta_2)]\rho_{14}^{(1)} &= i\Omega_1^*\rho_{13}^{(1)}, \\ \rho_{12}^{(0)} &= \frac{iA\Omega_1^*\rho_{11}^{(0)}}{\Gamma/2 + i\delta_1}; \quad \rho_{34}^{(0)} = \frac{i\Omega_1^*\rho_{33}^{(0)}}{\Gamma/2 + i\delta_1}. \end{aligned} \quad (8)$$

Здесь мы полагаем, что член \hat{R} в (5) диагонален и, следовательно, дает вклад в (8) неявно через населенности нулевого порядка $\rho_{ii}^{(0)}$. Из (8) можно получить связанные уравнения для низкочастотных когерентностей:

$$\begin{aligned} \left[\frac{|A\Omega_1|^2}{\Gamma/2 - i\delta_2} + \frac{|\Omega_1|^2}{\Gamma/2 + i(2\delta_1 - \delta_2)} + i(\delta_1 - \delta_2) \right] \rho_{13}^{(1)} - bA\Gamma\rho_{24}^{(1)} &= \\ &= -\frac{AB\Omega_2\Omega_1^*}{\Gamma/2 - i\delta_2}\rho_{33}^{(0)} - \frac{AB\Omega_2\Omega_1^*}{\Gamma/2 + i\delta_1}\rho_{11}^{(0)}, \\ [\Gamma + i(\delta_1 - \delta_2)]\rho_{24}^{(1)} - \left\{ \frac{A|\Omega_1|^2}{\Gamma/2 - i\delta_2} + \frac{A|\Omega_1|^2}{\Gamma/2 + i(2\delta_1 - \delta_2)} \right\} \rho_{13}^{(1)} &= \\ &= \left\{ \frac{B\Omega_2\Omega_1^*}{\Gamma/2 - i\delta_2} + \frac{B\Omega_2\Omega_1^*}{\Gamma/2 + i\delta_1} \right\} \rho_{33}^{(0)}. \end{aligned} \quad (9)$$

Правые части (9) описывают возникновение $\rho_{13}^{(1)}$ и $\rho_{24}^{(1)}$ за счет интерференции перехода. Полевое уширение и оптические сдвиги состояний основного уровня представлены в квадратных скобках в первом уравнении. Уравнения (9) не являются независимыми из-за вторых членов в левых частях, которые соответствуют спонтанному и вынужденному переносам когерентности между уровнями. В рассматриваемом пределе малых насыщений появление когерентности $\rho_{24}^{(1)}$ в уравнении для $\rho_{13}^{(1)}$ связано со спонтанным каскадом. Этот процесс, как можно увидеть из (9), приводит к изменениям в положении, ширине и амплитуде нелинейного резонанса, обусловленного низкочастотной когерентностью основного состояния. Исключая при помощи (9) низкочастотную когерентность из (7), получим окончательный результат для линейного отклика:

$$\rho_{23}^{(1)} = \frac{-iB\Omega_2}{\Gamma/2 - i\delta_2} \left\{ \rho_{33}^{(0)} + \frac{(b-1)\rho_{33}^{(0)}|A\Omega_1|^2}{|A\Omega_1|^2(1-b) + |\Omega_1|^2(1-bA^2)\frac{\Gamma/2-i\delta_2}{\Gamma/2+i\delta_1} + i(\delta_1-\delta_2)(\Gamma/2-i\delta_2)} + \frac{(b\rho_{33}^{(0)} - \rho_{11}^{(0)})|A\Omega_1|^2}{|A\Omega_1|^2(1-b)\frac{\Gamma/2+i\delta_1}{\Gamma/2-i\delta_2} + |\Omega_1|^2(1-bA^2) + i(\delta_1-\delta_2)(\Gamma/2+i\delta_1)} \right\}, \quad (10)$$

где, интересуясь двухфотонным резонансом с шириной меньше естественной, мы использовали приближение $|\delta_1 - \delta_2| \ll \Gamma$.

4. Рассмотрим сначала случай неподвижных атомов $\mathbf{v} = 0$ (однородное уширение). Стационарные населенности нулевого порядка $\rho_{11}^{(0)}$ и $\rho_{33}^{(0)}$ определяются балансом между процессами накачки и релаксации уровней и, очевидно, не могут содержать структуры с шириной меньше Γ . Следовательно, за субнатуральные резонансы на разности частот $(\delta_1 - \delta_2)$ ответственны два последних члена в (10). Если поле накачки настроено в точный резонанс $\delta_1 = 0$, то знак двухфотонного резонанса поглощения определяется знаком выражения $(2b-1)\rho_{33}^{(0)} - \rho_{11}^{(0)}$, то есть зависит как от коэффициента ветвления, так и от населенностей в отсутствие пробного поля (см. рис.2а). Например, если $b = 0$, то есть спонтанный каскад отсутствует, то резонанс всегда отрицательный, что соответствует электромагнитно индуцированной прозрачности. В обратном случае замкнутого перехода ($b = 1$) резонанс положителен, если $\rho_{33}^{(0)} > \rho_{11}^{(0)}$. При $\rho_{11}^{(0)} = 0$ поглощение возрастает (по отношению к линейному) в $(A/B)^2$ раз.

Положение и ширина положительного резонанса (последнее слагаемое в (10)) определяются реальной и мнимой частями выражения

$$(1-b)\frac{|A\Omega_1|^2}{\delta_1 - i\Gamma/2} - (1-bA^2)\frac{|\Omega_1|^2}{\delta_1 + i\Gamma/2},$$

которое является линейной комбинацией комплексных световых сдвигов состояний основного уровня с коэффициентами, зависящими от b .

5. Покажем теперь, что эффект не исчезает при усреднении по скоростям атомов, по крайней мере, в одном практически важном случае. Пусть сонаправленные волны имеют приблизительно равные доплеровские сдвиги $(\mathbf{k}_1 \mathbf{v}) \approx (\mathbf{k}_2 \mathbf{v}) \approx kv_z$, переход замкнут, $b = 1$, а населенности нулевого порядка $\rho_{11}^{(0)} = 0$ и $\rho_{33}^{(0)} = f_M(\mathbf{v})$ - распределение Максвелла по скоростям. Усредненную оптическую когерентность можно

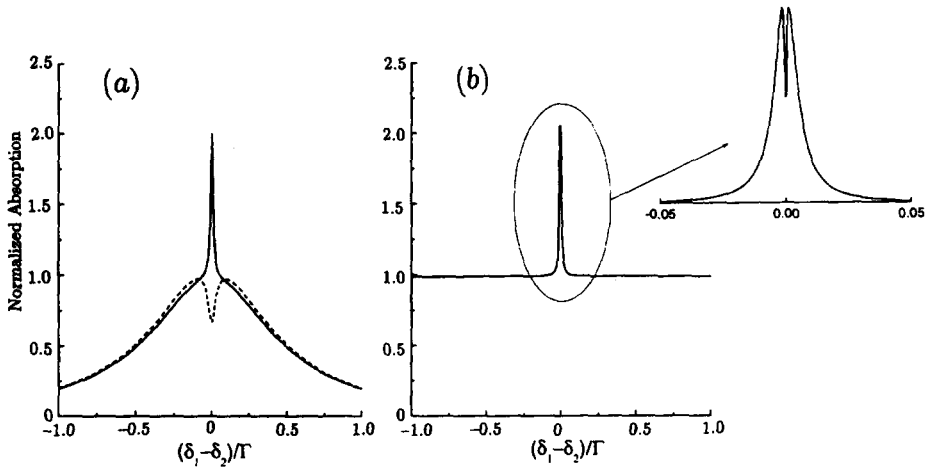


Рис.2. Поглощение пробного поля, нормированное на линейное поглощение в центре линии, как функция разности частот в случае однородного уширения $v = 0$ (а) и в случае доплеровского уширения $k\bar{v} = 10\Gamma$ (б). Сплошные (штриховые) линии соответствуют случаю $b = 1$ ($b = 0$). Параметры поля накачки: $\delta_1 = 0$, $\Omega_1 = 0.1\Gamma$; другие параметры: $A^2 = B^2 = 1/2$, $\rho_{11}^{(0)} = 0$

выразить через функцию ошибок (интеграл вероятности):

$$\langle \rho_{23} \rangle_v = -iB\Omega_2 \left\{ V(\delta_2) + \frac{|A\Omega_1|^2}{|B\Omega_1|^2 + i\Gamma(\delta_1 - \delta_2) - (\delta_1 - \delta_2)^2} \times \right. \\ \left. \times \left[V(\delta_2) + V\left(-\delta_1 + \frac{|B\Omega_1|^2}{\delta_1 - \delta_2}\right) \right] \right\},$$

$$V(x) = \frac{\sqrt{\pi}}{k\bar{v}} \exp \left[\left(\frac{\Gamma/2 - ix}{k\bar{v}} \right)^2 \right] \left(1 - \operatorname{erf} \left(\frac{\Gamma/2 - ix}{k\bar{v}} \right) \right), \quad (11)$$

где $\delta_q = \omega_q - \omega_0$, $\bar{v} = \sqrt{2k_B T/M}$, а $V(x)$ описывает хорошо известный фойхтовский контур (свертка лорентциана с гауссовской кривой). В случае большой доплеровской ширины, $k\bar{v} \gg \Gamma$, поглощение пробного поля $\propto \operatorname{Re}\{i\Omega_2^* \langle \rho_{23} \rangle_v\}$ как функция разности частот $(\delta_1 - \delta_2)$ содержит две структуры, расположенные в точке $\delta_1 - \delta_2 = 0$, с различными ширинами и знаками (см. рис.2б). Одна из них, описываемая лорентцианом $|A\Omega_1|^2 / (|B\Omega_1|^2 + i\Gamma(\delta_1 - \delta_2))$, имеет ширину $|B\Omega_1|^2/\Gamma$ и дает увеличение поглощения. Вторая связана с функцией $V(-\delta_1 + |B\Omega_1|^2/(\delta_1 - \delta_2))$ в (11) и описывает очень узкий провал в спектре поглощения. Эта структура с шириной $|B\Omega_1|^2/(k\bar{v})$ является результатом усреднения. Для атома с заданной скоростью v эффективная отстройка есть $\delta_1 - kv_x$ и, как видно из (10), резонанс оптически сдвинут относительно точки $\delta_1 - \delta_2 = 0$. Сумма таких сдвинутых резонансов с ширинами и амплитудами, зависящими от v_x , и дает провал. При $\delta_1 \neq 0$ резонанс становится асимметричным.

Отметим, что при комнатной температуре ширины резонанса в поглощении и более узкого провала в нем отличаются на два порядка. Это обстоятельство может рассматриваться как возможная причина отсутствия таких провалов в экспериментах [4, 5].

6. В заключение отметим, что схема взаимодействия N -типа может быть легко организована в реальных атомных системах. Например, рассмотрим замкнутый $F_g = F \rightarrow F_e = F + 1$ переход линии D_2 атомов щелочных металлов, взаимодействующий с циркулярно поляризованным (σ_+) полем накачки. В отсутствие пробного поля все атомы перекачиваются на крайние зеемановские состояния $|F_g, m_g = F\rangle$ и $|F_e, m_e = F + 1\rangle$. Если пробное поле имеет ортогональную циркулярную поляризацию (σ_-), то, с точностью до первого порядка по амплитуде пробного поля Ω_2 , мы имеем N -атом с состояниями $|1\rangle = |F_g, m_g = F - 2\rangle$, $|2\rangle = |F_e, m_e = F - 1\rangle$, $|3\rangle = |F_g, m_g = F\rangle$ и $|4\rangle = |F_e, m_e = F + 1\rangle$. Именно эта схема была реализована в [4, 5] при экспериментах с циркулярно поляризованными волнами.

Авторы благодарны А.М.Акульшину, который привлек их внимание к проблеме. Данная работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант #98-02-17794).

-
1. S.E.Harris, *Physics Today* **50**(7), 36 (1997).
 2. E.Arimondo, *Coherent Population Trapping*, in *Progr. in Optics*, Ed. E.Wolf, North-Holland, Amsterdam, **XXXV**, 259 (1996).
 3. M.O.Scully, *Phys. Rep.* **129**, 191 (1992); O.Kocharovskaya, *Phys. Rep.* **175**, 191 (1992).
 4. A.M.Akulshin, S.Barreiro, and A.Lezama, *Phys. Rev.* **A57**, 2996 (1998).
 5. A.Lezama, S.Barreiro, and A.M.Akulshin, to be published in *Phys. Rev. A*.
 6. С.Г.Раутиан, Письма в ЖЭТФ **60**, 481 (1994).
 7. С.Г.Раутиан, ЖЭТФ **115**, 12 (1999).
 8. С.Г.Раутиан, Г.И.Смирнов, А.М.Шалагин, *Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул*, Новосибирск: Наука, 1979, Гл.III, §8.