EESTI NSV TEADUSTE AKADEEMIA TOIMETISED.
FÜÜSIKA. MATEMAATIKA
ИЗВЕСТИЯ АКАДЕМИИ НАУК ЭСТОНСКОЙ ССР. ФИЗИКА. МАТЕМАТИКА
PROCEEDINGS OF THE ACADEMY OF SCIENCES OF THE ESTONIAN SSR.
PHYSICS. MATHEMATICS
1984, 33, 2

УДК 535.33

М. РОЗМАН

ОПТИЧЕСКИЕ СПЕКТРЫ ДВУХУРОВНЕВОЙ СИСТЕМЫ В БИГАРМОНИЧЕСКОМ ПОЛЕ

(Представил В. Хижняков)

Цель данного сообщения — нахождение положений, интенсивностей и ширин линий резонансной флуоресценции двухуровневой системы в бигармоническом поле. Рассматривается возбуждение электромагнитными полями одинаковой интенсивности, частоты которых расположены симметрично относительно частоты электронного перехода. Учитываются процессы радиационной релаксации и интерференция переизлучаемых фотонов.

Согласно [1], энергетический спектр собственных состояний системы двухуровневый атом—поле («одетых» состояний) эквидистантен с расстоянием между уровнями равным отстройке Δ частот поля от резонанса. Собственные состояния имеют вид

$$|k, M\rangle = \sum_{n=-\infty}^{\infty} (C_{2n}(E_k)\,|g\rangle\,|n, M-n\rangle_b + C_{2n+1}(E_k)\,|e\rangle\,|n, M-n-1\rangle_b),$$
$$E_k = k\Delta, \tag{1}$$

где $|g\rangle$ и $|e\rangle$ — основное и возбужденное состояния атома соответственно, $|n, m\rangle_b$ — состояние поля с n-фотонами частоты $\omega_1 = \omega_{10} + \Delta$ и m-фотонами частоты $\omega_2 = \omega_{10} - \Delta$. Коэффициенты в разложении (1) волновой функции обладают свойством

$$C_n(E) = e^{i\alpha p} C_{n-p}(E - p\Delta), \tag{2}$$

где $e^{i\alpha}$ — несущественный для нас фазовый множитель.

$$C_n \equiv C_n(0) = J_n(2\Gamma/\Delta), \tag{3}$$

где $J_n(x)$ — функция Бесселя; далее $J_n \equiv J_n(4\Gamma/\Delta)$, Γ — частота Раби каждого из возбуждающих полей. Матричный элемент дипольного момента перехода с излучением фотона

$$d^{+}_{mn} = \langle m, M'|\hat{d}|n, M\rangle = d_0/2\,(\delta_{m+1-n,0} + (-1)^m J_{m+1-n})\,\delta_{M,M'+1}, \tag{4}$$

где $d_0 = \langle g|\hat{d}|e\rangle$. Матричный элемент перехода с поглощением фотона

$$d^{-}_{mn} = (d^{+}_{nm})^{*}. \tag{5}$$

Частота ω_{10} соответствует переходу из состояния $|n, M\rangle$ в состояние $|n+1, M-1\rangle$, частота $\omega = \omega_2 + (n-k)\Delta = \omega_{10} + (n-k-1)\Delta$ — переходу между состояниями $|n, M\rangle$ и $|k, M-1\rangle$.

При стремлении силы поля к 0 состояния $|n, M\rangle$ с четными n переходят в повторения основного, а с нечетными — возбужденного состояния. Таким образом, система остается инвариантной при трансляции по оси энергии на 2Δ, а не на Δ, как можно полагать из вида энергетического спектра. Значит, существуют две непереходящие друг в друга группы уровней (четные и нечетные), которые следует рассматривать отдельно.

Константа радиационного распада нечетного уровня на уровни своей группы может быть записана в виде

$$\Gamma_{11}=z\sum_{k=-\infty}^{\infty}|d^{+}_{2k+1\,2m+1}|^2=\Gamma_0/4\sum_{k=-\infty}^{\infty}J^2_{2k+1}, \tag{6}$$

где z — параметр, содержащий все необходимые множители, а Γ_0 — константа радиационного распада «голого» атома.

Константа радиационного распада нечетного уровня на уровни «четной» группы

$$\Gamma_{12}=z\sum_{k=-\infty}^{\infty}|d^{+}_{2k\,2m+1}|^2=\Gamma_0/4\,(1+2J_0+\sum_{k=-\infty}^{\infty}J^2_{2k}). \tag{7}$$

Полная константа распада нечетного уровня

$$\Gamma_1=\Gamma_{11}+\Gamma_{12}=\Gamma_0/2\,(1+J_0). \tag{8}$$

Аналогичные величины для уровней «четной» группы

$$\Gamma_{21}=z\sum_{k=-\infty}^{\infty}|d^{\pm}_{2k+1\,2m}|^2=\Gamma_0/4\,(1-2J_0+\sum_{k=-\infty}^{\infty}J^2_{2k}), \tag{9}$$

$$\Gamma_{22}=z\sum_{k=-\infty}^{\infty}|d^{+}_{2k\,2m}|^2=\Gamma_{11}, \tag{10}$$

$$\Gamma_2=\Gamma_{21}+\Gamma_{22}=\Gamma_0/2\,(1-J_0). \tag{11}$$

Предположим вначале, что $\Delta\gg\Gamma_0$. Тогда для диагональных элементов матрицы плотности применимо секулярное приближение [2]. Имеем балансные уравнения

$$\begin{aligned}\dot p_1&=-\Gamma_1p_1+\Gamma_{11}p_1+\Gamma_{21}p_2,\\ \dot p_2&=-\Gamma_2p_2+\Gamma_{12}p_1+\Gamma_{22}p_2,\end{aligned} \tag{12}$$

содержащие всего две независимые функции p_2 и p_1 — заселенности произвольного уровня из «четной» и «нечетной» групп соответственно.

Далее нам понадобятся не сами p_i, а полные заселенности каждой группы — Π_1 и Π_2, удовлетворяющие той же системе (12). Учитывая, что

$$\Pi_1+\Pi_2=1, \tag{13}$$

получаем после установления радиационного равновесия

$$\Pi_1=\Gamma_{21}/(\Gamma_{21}+\Gamma_{12})=1/2-J_0/(1+\sum_{m=-\infty}^{\infty}J^2_{2m}), \tag{14}$$

$$\Pi_2=\Gamma_{12}/(\Gamma_{21}+\Gamma_{12})=1/2+J_0/(1+\sum_{m=-\infty}^{\infty}J^2_{2m}). \tag{15}$$

При увеличении интенсивности поля заселенность Π_2 убывает от 1, а заселенность Π_1 возрастает от 0. Обе они стремятся к предельному значению 1/2, осциллируя вокруг него.

Получим теперь уравнения для недиагональных элементов матрицы плотности $\sigma_{mn}\equiv\langle m,M-1|\sigma|n,M\rangle$. В силу сдвиговой инвариантности σ_{mn} не зависят от значений m и n, а определяются их разностью и четностью. Обозначим $\sigma_{1p}=\sigma_{mn}$, $d_{1p}=d_{mn}{}^{+}$ при m,n — нечетных, $\sigma_{2p}=$

$= \sigma_{mn}$, $d_{2p} = d_{mn}^+$ при m, n — четных, $\sigma_{3p} = \sigma_{mn}$, $d_{3p} = d_{mn}^+$, при n — нечетном, m — четном, $\sigma_{4p} = \sigma_{mn}$, $d_{4p} = d_{mn}^+$ при n — четном, m — нечетном (везде $p = n - m$).

σ_{1p} и σ_{2p} относятся к переходам с частотой $\omega_p \equiv \omega_2 + p\Delta$, $p = 0, \pm 2, \pm 4, \ldots$, а σ_{3p} и σ_{4p} — к переходам с частотой ω_p, $p = \pm 1, \pm 3, \ldots$.

С переходом частоты ω_p интерферирует [2] бесконечное число других переходов такой же частоты, и следовательно, мы должны иметь бесконечную систему дифференциальных уравнений для бесконечного числа элементов матрицы плотности.

В силу трансляционной инвариантности независимыми оказываются всего две пары

$$\left.\begin{aligned} \dot\sigma_{1p} &= -i\omega_p\sigma_{1p} - \Gamma_1\sigma_{1p} + \Gamma_{11}\sigma_{1p} + \Gamma_{21}\sigma_{2p} \\ \dot\sigma_{2p} &= -i\omega_p\sigma_{2p} - \Gamma_2\sigma_{2p} + \Gamma_{22}\sigma_{2p} + \Gamma_{12}\sigma_{1p} \end{aligned}\right\}, \tag{16}$$

$$\left.\begin{aligned} \dot\sigma_{3p} &= -i\omega_p\sigma_{3p} - \Gamma_3\sigma_{3p} + D_1\sigma_{3p} + D_2\sigma_{4p} \\ \dot\sigma_{4p} &= -i\omega_p\sigma_{4p} - \Gamma_3\sigma_{4p} + D_2\sigma_{3p} + D_1\sigma_{4p} \end{aligned}\right\}. \tag{17}$$

Здесь $\Gamma_3 \equiv 1/2(\Gamma_1 + \Gamma_2) = \Gamma_0/2$,

$$D_1 \equiv z \sum_{m=-\infty}^{\infty} \overset{+}{d}_{2k\,2m} (\overset{+}{d}_{2k+1\,2m+1})^* = -\Gamma_0/4 \sum_{m=-\infty}^{\infty} J^2_{2m+1} = -\Gamma_{11},$$

$$D_2 \equiv z \sum_{m=-\infty}^{\infty} \overset{+}{d}_{2k+1\,2m} (\overset{+}{d}_{2k\,2m-1})^* = -D_1.$$

Обозначим

$$S_p^{(1)} \equiv \begin{pmatrix} \sigma_{1p} \\ \sigma_{2p} \end{pmatrix}, \quad S_p^{(2)} \equiv \begin{pmatrix} \sigma_{3p} \\ \sigma_{4p} \end{pmatrix},$$

$$\Omega_p^{(1)} \equiv \begin{pmatrix} -i\omega_p - \Gamma_{12} & \Gamma_{21} \\ \Gamma_{12} & -i\omega_p - \Gamma_{21} \end{pmatrix}, \qquad p = 0, \pm 2, \ldots$$

$$\Omega_p^{(2)} \equiv \begin{pmatrix} -i\omega_p - \Gamma_3 + D_1 & -D_1 \\ -D_1 & -i\omega_p - \Gamma_3 + D_1 \end{pmatrix}, \quad p = \pm 1, \pm 3, \ldots.$$

Тогда уравнения (16), (17) можно переписать в виде

$$\left.\begin{aligned} \dot S_p^{(1)} &= \Omega_p^{(1)} S_p^{(1)} \\ \dot S_p^{(2)} &= \Omega_p^{(2)} S_p^{(2)} \end{aligned}\right\}. \tag{18}$$

Спектр рассеяния системой, матрица которой описывается уравнениями (18), имеет вид [3]

$$I(\omega) = \sum_p I_p(\omega), \tag{19}$$

где

$$I_p = \begin{cases} -(d^*_{1p}, d^*_{2p}) Re[(\Omega_p^{(1)})^{-1}] \begin{pmatrix} d_{1p}\Pi_1 \\ d_{2p}\Pi_2 \end{pmatrix}, & p = 0, \pm 2, \ldots \\ -(d^*_{3p}, d^*_{4p}) Re[(\Omega_p^{(2)})^{-1}] \begin{pmatrix} d_{3p}\Pi_1 \\ d_{4p}\Pi_2 \end{pmatrix}, & p = \pm 1, \pm 3, \ldots. \end{cases} \tag{20}$$

Обратные матрицы, входящие в (20), равны

$$(\Omega_p^{(1)})^{-1} = 1/(-i\omega_p) \begin{pmatrix} \Pi_1 & \Pi_1 \\ \Pi_2 & \Pi_2 \end{pmatrix} + 1/(-i\omega_p - \Gamma_{12} - \Gamma_{21}) \begin{pmatrix} \Pi_2 & -\Pi_1 \\ -\Pi_2 & \Pi_1 \end{pmatrix}, \tag{21}$$

$$(\Omega_p^{(2)})^{-1}=1/2(-i\omega_p-\Gamma_3)\begin{pmatrix}1&1\\1&1\end{pmatrix}+1/2(-i\omega_p-\Gamma_3+2D_1)\begin{pmatrix}1&-1\\-1&1\end{pmatrix}. \quad (22)$$

Производя вычисления, окончательно получаем

$$I(\omega)=\frac{\Gamma_3\cdot J_0(\Pi_2-\Pi_1)}{(\omega_{10}-\omega)^2+\Gamma_3^2}+\frac{(\Gamma_3-2D_1)(1+J_0(\Pi_2-\Pi_1))}{(\omega_{10}-\omega)^2+(\Gamma_3-2D_1)^2}+$$
$$+\sum_{k=-\infty}^{\infty}\Big[\pi\delta(\omega_1-\omega+2k\Delta)(\Pi_1-\Pi_2)^2\tilde{\Gamma}_{2k}+ \quad (23)$$
$$+\frac{(\Gamma_{12}+\Gamma_{21})\cdot 4\Pi_1\Pi_2\tilde{\Gamma}_{2k}}{(\omega_1-\omega+2k\Delta)^2+(\Gamma_{12}+\Gamma_{21})^2}+\frac{\Gamma_3\cdot\tilde{\Gamma}_{2k+1}}{(\omega_1-\omega+(2k+1)\Delta)^2+\Gamma_3^2}\Big].$$

Здесь $\tilde{\Gamma}_n\equiv\Gamma_0/4\,J_{n+1}^2$, причем для $n\neq-1$ $\tilde{\Gamma}_n=z|d^+_{m-n,m}|^2$ совпадает с константой радиационного распада с уровня m на уровень $m-n$.

Таким образом, спектр состоит из когерентной и некогерентной частей. Первая, линии нулевой ширины на лазерных частотах (релеевское рассеяние) и их повторения с шагом 2Δ — когерентная генерация гармоник. Вторая, прогрессия лоренцевских линий шириной Γ_3 на частоте электронного перехода и ее повторениях с шагом 2Δ и прогрессия лоренцевских линий шириной $\Gamma_{12}+\Gamma_{21}$, совпадающих по частоте с линиями когерентного рассеяния. Кроме того, на частоте ω_{10} присутствует линия шириной Γ_3-2D_1. Неожиданным результатом расчета явился тот факт, что на частотах $\omega_{10}+2k\Delta$, $k=\pm1, \pm2, \ldots$ линии такой ширины отсутствуют: их интенсивность точно обращается в ноль из-за деструктивной интерференции различных каскадных процессов.

Спектр поглощения слабого пробного поля значительно менее богатый и состоит всего из двух лоренцевских линий шириной Γ_3 и Γ_3-2D_1 на частоте ω_{10}

$$I_a(\omega)\sim J_0(\Pi_2-\Pi_1)\left[\frac{\Gamma_3}{(\omega_{10}-\omega)^2+\Gamma_3^2}+\frac{\Gamma_3-2D_1}{(\omega_{10}-\omega)^2+(\Gamma_3-2D_1)^2}\right]. \quad (24)$$

В заключение остановимся на получении огибающей спектра рассеяния. Если спектральное разрешение прибора $\Delta\omega\gg\Delta$ (напомним требование $\Delta\gg\Gamma_0$), то ширины линий в (23) можно устремить к 0. Таким образом, необходимо сгладить спектр

$$I(\omega)=\pi\left[\sum_{\substack{n=-\infty\\ n\neq-1}}^{\infty}\delta(\omega_1+n\Delta-\omega)\tilde{\Gamma}_n+2(1+J_0(\Pi_2-\Pi_1))\delta(\omega-\omega_{10})\right]. \quad (25)$$

Он совпадает со спектром, полученным в [1] без учета радиационной релаксации. Заменяя суммирование интегрированием $\sum_n\to\Delta^{-1}\int d(n\Delta)\ldots$ и используя асимптотику для функции Бесселя

$$J_k(k\sec\beta)=(2/\pi k\,\mathrm{tg}\,\beta)^{1/2}\cos(k\,\mathrm{tg}\,\beta-k\beta-\pi/4), \quad (26)$$

получаем:

$$I_e(\omega)=\Delta^{-1}J^2_{\omega/\Delta}(\omega/\Delta\cdot(4\Gamma/\omega))=\begin{cases}2(16\Gamma^2-\omega^2)^{-1/2}\cos\left[\Delta^{-1}(16\Gamma^2-\omega^2)^{1/2}-\right.\\ \left.-(\omega/\Delta)\arccos(\omega/4\Gamma)-\pi/4\right]\\ \text{при } |\omega|<4\Gamma;\\ 0 \text{ при } |\omega|>4\Gamma,\end{cases} \quad (27)$$

ω здесь отсчитывается от частоты ω_{10} электронного перехода.

Рассмотрим случай измерения со спектральным разрешением $\Delta\omega<\Gamma_0$. Огибающая в этом случае имеет смысл при возбуждении с отстройкой $\Delta \ll \Gamma_0$. При этом, однако, не применимо секулярное приближение (12), (16), (17). Покажем, что учет несекулярных членов не изменит результата. Действительно, несекулярные слагаемые войдут в уравнение для матрицы плотности с коэффициентами $d_{mk}^+(d_{np}^+)^*$ (d_{mk}^+ определяется формулой (4)), $m-k \neq n-p$, $\max[(m-k)-(n-p)] \sim \Gamma_0/\Delta$. При условии $2\Gamma/\Delta \gg \Gamma_0/\Delta$ все такие коэффициенты — быстро осциллирующие с изменением знака функции. Поэтому, аналогично известному приближению хаотических фаз, в уравнениях можно оставить слагаемые со знакопостоянными коэффициентами $|d_{mk}^+|^2$, т. е. секулярные члены. Итак, условие применимости формул этой статьи: или $\Delta \gg \Gamma_0$, или $\Gamma \gg \Gamma_0$, что можно записать в виде: $(\Delta^2+\Gamma^2)^{1/2} \gg \Gamma_0$. В такой форме это условие совпадает с условием применимости метода «одетых» состояний для монохроматического возбуждения.

Итак, огибающая спектра (23) при возбуждении бихроматическим полем внутри радиационного контура ($\Delta \ll \Gamma_0$) состоит из двух частей: тонкой структуры

$$I_f = (\Pi_2 - \Pi_1) I_e, \tag{28}$$

где I_e определяется (27), образованной когерентным рассеянием, и пьедестала, образованного некогерентным рассеянием. Такого типа спектр наблюдался в [4].

Автор признателен В. Хижнякову за обсуждение работы.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Розман М. Г., Хижняков В. В.* Изв. АН ЭстССР. Физ. Матем., **33**, № 1, 119—123 (1984).
2. *Cohen-Tannoudji, C.* In: Frantiers in Laser Spectroscopy (Ed. Balian R. et al.). North-Holland, 1977, 3—104.
3. *Cohen-Tannoudji, C., Reynaud, S.* J. Phys. B: Atom. Molec. Phys., **10**, № 3, 345—363 (1977).
4. *Бонч-Бруевич А. М., Вартанян Т. А., Чигирь Н. А.* Ж. эксперим. и теор. физ., **77**, № 5, 1898—1909 (1979).

Институт физики
Академии наук Эстонской ССР

Поступила в редакцию
18/IV 1983

M. ROZMAN

KAHENIVOOLISE SÜSTEEMI OPTILISED SPEKTRID BIHARMOONILISES VÄLJAS

On vaadeldud kahe võrdse intensiivsusega monokromaatilise välja hajumisspektrit kahenivoolisel süsteemil, kusjuures ergastussagedused asuvad sümmeetriliselt elektronülemineku sageduse suhtes. Arvesse on võetud kiirgusrelaksatsiooni ning taaskiirgunud footonite interferentsi. Spekter koosneb joonte ekvidistantsest kogumist, kus paaritud jooned (arvestatuna elektronülemineku sagedusest) sisaldavad koherentset ja mittekoherentset komponenti ja paarisjooned ainult mittekoherentset komponenti. On leitud iga komponendi intensiivsus ja mittekoherentse hajumise joonte laius ning saadud proovivälja neeldumisspekter ja hajumisspektri mähisjoon.

M. ROZMAN

OPTICAL SPECTRA OF THE TWO-LEVEL SYSTEM IN A BIHARMONIC FIELD

Resonance fluorescence spectrum of the two-level system in the field of two monochromatic waves with equal strength, is considered. Excitation frequencies are assumed to be situated symmetrically with respect to the electronic transition frequency. Radiational relaxation processes and interference of re-emitted photons are taken into account. Optical spectrum represents the set of equidistant lines. Odd number lines (counted from electronic transition frequency) are a superposition of coherent and incoherent components. Even number lines contain only the incoherent part. The intensity of each component and the shape of incoherent scattering lines, are evaluated. Probe field absorption spectrum and the envelope of scattering spectrum are also obtained.