

ГЕНЕРАЦИЯ ГАРМОНИК ПРИ МНОГОФОТОННОМ ВОЗБУЖДЕНИИ ДВУХУРОВНЕВОЙ СИСТЕМЫ МОЩНЫМ ШУМОВЫМ ПОЛЕМ

Ю. С. Оселдчик

Рассчитан спектр поглощения пробного поля при широкополосном многофотонном возбуждении. Определены условия инверсии знака мощности поглощения и оценена возможность усиления и генерации гармоник при многофотонном воздействии на двухуровневую систему.

Теория формы линии поглощения слабого пробного поля разработана при однофотонном возбуждении как монохроматическим, так и шумовым полем [1-7].

Основные результаты теории хорошо известны — это динамический эффект Штарка в сильном поле, проявляющийся в расщеплении формы спектра поглощения пробного поля на три компоненты, и инверсия знака периферийных компонент спектрального триплета, смещенных относительно центральной линии на величину, пропорциональную амплитуде сильного поля, и нашли экспериментальное подтверждение [8, 9]. Изменение знака коэффициента поглощения имеет принципиальный характер, так как создает условия для создания лазеров с перестраиваемой частотой за счет изменения интенсивности поля накачки. Развитие этих представлений проявилось в обсуждении возможности генерации гармоник высоких порядков за счет изменения знака поглощения при многофотонном возбуждении атомов монохроматическим полем [10].

В настоящей работе развивается теория многофотонного поглощения двухуровневой системой (ДС), находящейся в шумовом марковском поле. Рассматривается шумовое излучение, возникающее за счет диффузии фазы и амплитудно-фазовой модуляции. Полученные результаты использованы для изучения формы спектра поглощения слабого пробного сигнала при двухфотонном возбуждении, и обсуждается возможность усиления излучения и генерации гармоник в шумовом поле.

Теория формы линий при многофотонном возбуждении фазомодулированной накачкой

Многофотонное поглощение ДС рассматривалось многочисленными авторами [11-14]. В дальнейшем используется методика, развитая Моллоу [11] при изучении многофотонных резонансных процессов в мощном монохроматическом поле. Излучение, воздействующее на ДС, представим в виде

$$E = E_1(t) \exp [i(\omega_1 t + \alpha(t))] + \text{с. с.} + E_2 \exp i\omega_2 t, \quad (1)$$

где волна с частотой ω_1 является шумовой со случайными амплитудой E_1 и фазой α , а пробное поле с частотой ω_2 считается монохроматическим.

Основные уравнения ДС в предположении, что амплитуда E_1 и фаза α модулированы стационарным марковским процессом, т. е. изменяются мгновенно и скачкообразно в одни и те же моменты времени, имеют следующий вид [15]:

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}\rho] - \frac{1}{\tau_0} \left[\rho - \int \int \rho(\alpha', E_1) R d\alpha' dE_1 \right]. \quad (2)$$

Здесь \hat{H} — гамильтониан системы ($H_{mn} = E_n$, $H_{ek} = V_{ek}$), τ_0 — среднее время между случайными изменениями марковских переменных, ρ — матрица плотности, а интегральное ядро

$$R(\alpha, \alpha'; E_1, E_1') = \frac{1}{\varphi(\alpha, E_1)} f(\alpha, \alpha'; E_1, E_1') \varphi(\alpha', E_1')$$

определяется условной плотностью вероятности $f(\alpha, \alpha'; E_1, E_1')$, характеризующей сохранение памяти марковских переменных, реализовавшихся на соседних участках квазимонохроматичности и равновесным распределением этих параметров в стационарном сечении процесса $\varphi(\alpha, E_1)$.

Решение уравнения (2) при m -фотонном возбуждении в поле (1) ищем в соответствии с [2, 11] в виде

$$n = n^0 + \sum_{p=1}^m (\nu_p^+ \exp[i(p\omega_1 - \omega_2)t] + \nu_p^- \exp[-i(p\omega_1 - \omega_2)t]),$$

$$\rho_{12} = \sum_{p=1}^{m+1} \beta_{12}^{(p)} \exp(ip\omega_1 t) + q_{12}^{(1)} \exp(i\omega_2 t) + \sum_{p=1}^m q_{12}^{(p+1)} \exp\{i[(p+1)\omega_1 - \omega_2]t\},$$

где постоянная составляющая заселенности n^0 и медленно изменяющиеся компоненты $\beta_{12}^{(p)}$ определяют поглощение накачки, а Фурье-компоненты ν_p^\pm и $q_{12}^{(p)}$ определяют поглощение слабого поля.

Ограничимся вначале рассмотрением поглощения мощного поля, шумовой характер которого определяется диффузией фазы, при которой сохраняется память между последующими реализациями, что соответствует марковскому процессу, задаваемому условной плотностью вероятности $f(\alpha, \alpha') = f(\alpha - \alpha')$.

Предполагая, что для медленно меняющихся Фурье-компонент $\beta_{12}^{(k)}$ при $k = 1, 2, \dots, m-1, m+1$ выполняется условие стационарности $\dot{\beta}_{12}^{(k)} = 0$, после усреднения по случайным фазам приходим к системе уравнений для средних значений постоянной составляющей заселенности и фазового элемента матрицы плотности $\beta_{12}^{(m)}$

$$\frac{d\bar{n}^0}{dt} + \frac{\bar{n}^0}{T_{1m}} + \frac{n_p}{T_1} = -2i [V_1 (iV_0)^{m-1} G_m^* \bar{\beta}_{12}^{(m)} - V_1^* (-iV_0)^{m-1} G_m \bar{\beta}_{12}^{(m)}], \quad (3)$$

$$\frac{d\bar{\beta}_{12}^{(m)}}{dt} + \left(\frac{1}{T_{2m}} + i\Omega_m \right) \bar{\beta}_{12}^{(m)} = iV_1 (iV_0)^{m-1} G_m \bar{n}^0. \quad (4)$$

Здесь $V_1 = |\lambda_{12} E_1|/\hbar$, $V_0 = |(\lambda_{11} - \lambda_{22}) E_1|/\hbar + V_1$ — приведенные матричные элементы возмущения, λ_{ek} — матричные элементы дипольного момента,

$\frac{1}{T_{1m}} = \frac{1}{T_1} + P_m$, $\frac{1}{T_{2m}} = \frac{1}{\tau_{2m}} + \Gamma_m$ — эффективные времена релаксации, где

$$\frac{1}{\tau_{2m}} = \frac{1}{T_2} + \frac{1 - \gamma_m}{\tau_0},$$

T_1, T_2 — времена продольной и поперечной релаксации,

$$\gamma_m = \int \exp[-im(\alpha - \alpha')] f(\alpha - \alpha') d(\alpha - \alpha')$$

коэффициент корреляции в фазомодулированном поле,

$$\Gamma_m = |V_0|^2 \operatorname{Re} g, \quad \Lambda_m = |V_0|^2 \operatorname{Im} g, \quad P_m = 2|V_1|^2 \frac{1}{\tau_{21}} \left(\frac{1}{\tau_{21}^2} + \delta_1^2 \right)^{-1}$$

ширина и сдвиг, связанные с эффектом Штарка, $\delta_m = m\omega_1 - \omega_0$, $\Omega_m = \delta_m - \Lambda_m$ — девиация частот,

$$G_m = \left[\prod_{k=1}^{m-1} \left(\frac{1}{\tau_{2k}} + i\delta_k \right) \right]^{-1}, \quad g = \left(\frac{1}{\tau_{2m+1}} + i\delta_{m+1} \right)^{-1} + \left(\frac{1}{\tau_{2m-1}} + i\delta_{m-1} \right)^{-1}.$$

Используя решение уравнения (3), (4) как нулевое приближение, в первом приближении по слабому полю E_2 находим Фурье-компоненту $q_{12}^{(1)}(\omega_2)$, определяющую среднюю мощность поглощения пробного излучения при двухфотонной накачке фазомодулированным полем с сохраняющейся памятью между значениями фаз, реализовавшимися на соседних участках квазимонохроматичности ($m=2$)

$$\bar{A}(\omega_2) = \hbar\omega_0\nu \operatorname{Im} q_{12}^{(1)}(\omega_2) = \hbar\omega_0\nu^2 \times \\ \times \operatorname{Re} \frac{\left\{ \bar{n}^0 \left[\left(\frac{1}{\tau_{12}} - i\varepsilon_2 \right) \left(\frac{1}{\tau_2} - i(\varepsilon_2 + \delta_1) + \Lambda_{22} \right) + 2|V_1|^2 \right] - 2\beta_{21}^{(2)} |V_1|^2 g_{21} \right\}}{\left(\frac{1}{T_2} + i\varepsilon_0 + \Lambda_{11} \right) \left[\left(\frac{1}{\tau_{12}} - i\varepsilon_2 \right) \left(\frac{1}{\tau_{23}} - i(\varepsilon_2 + \delta_1) + \Lambda_{22} \right) + 2|V_1|^2 \right] + |V_1|^2 |g_{21}|^2}. \quad (5)$$

Здесь введены обозначения

$$\nu = \frac{|\lambda_{12} E_2|}{\hbar}, \quad \varepsilon_2 = 2\omega_1 - \omega_2, \quad \varepsilon_0 = \omega_2 - \omega_0,$$

$$\Lambda_{11} = |V_1|^2 \left[\frac{1}{\tau_{21}} - i(\varepsilon_1 + \delta_1) \right] \Delta^{-1}, \quad \Lambda_{22} = |V_0|^2 \left(\frac{1}{\tau_{11}} - i\varepsilon_1 \right) \Delta^{-1},$$

$$g_{21} = V_1^* V_0 \Delta^{-1}, \quad \frac{1}{\tau_{12}} = \frac{1}{T_1} + \frac{1 - \gamma_2}{\tau_0},$$

а

$$\Delta = \left(\frac{1}{\tau_{11}} - i\varepsilon_1 \right) \left(\frac{1}{\tau_{21}} - i(\varepsilon_1 + \delta_1) \right) + 2|V_1|^2.$$

Из выражения (5) вытекает определение формы спектра поглощения при двухфотонном возбуждении $\bar{A}(\omega_2) = \hbar\omega_0 \bar{n}^0 \nu^2 F(\omega_2)$, которая в условиях сильной накачки V_1 , $V_0 \gg \frac{1}{T_{22}}$ оценивается следующим образом:

$$F(\omega_2) = \operatorname{Re} \left\{ \frac{1}{T_1 + i(\varepsilon_0 + \sigma_2)} \left[1 - K_2 |V_1|^2 \frac{1}{\Delta} \left(\frac{1}{\Delta^*} + 2G_2 \left(\frac{1}{T_{22}} + i\Omega_2 \right)^{-1} \right) \times \right. \right. \\ \left. \left. \times (\Gamma_{02} - i(\varepsilon_2 + \Delta_2 + G_0))^{-1} (\Gamma_{02} - i(\varepsilon_2 + \Delta_2 - G_0))^{-1} \right] \right\}.$$

При точном резонансе $2\omega_1 = \omega_0$ ($\varepsilon_2 = \varepsilon_0$) спектральная линия представляет собой триплет (рис. 1), центральная компонента которого с шириной $\Gamma_1 = \frac{1}{T_2} + \operatorname{Re} \Lambda_{11}$, определяемой термическими и спонтанными шумами и штарковским сдвигом $\sigma_2 = \operatorname{Im} \Lambda_{11}$, при $\varepsilon_0 = -\sigma_2$ компенсируется периферийными компонентами, имеющими дисперсионную форму и инвертирующими знак на частотах, пропорциональных первой степени амплитуды сильного поля накачки

$$\varepsilon_0 + \Delta_2 = \pm V_1 (2 + K_2 |\Delta|^{-2})^{1/2} = \pm G_0, \quad (6)$$

Здесь введен коэффициент $K_2 = |V_1|^2 |V_0|^2$, определяющий эффективность периферийных компонент, и сдвиг линии $\Delta_2 = \delta_1 + \text{Im} \Lambda_{22}$ пропорционален штарковскому смещению.

Возрастание ширины шума $(1 - \gamma_2)/\tau_0$ приводит к уширению линий отрицательного поглощения

$$\Gamma_{02} = \frac{1 - \gamma_2}{\tau_0} + \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_2} + \frac{1}{T_1} \right) + \text{Re} \Lambda_{22}.$$

При отстройке частоты поля накачки от двухфотонного резонанса ($\Omega_2 \neq 0$) форма линии поглощения становится асимметричной, а компонента отрицательного поглощения проявляется более эффективно (рис. 2).

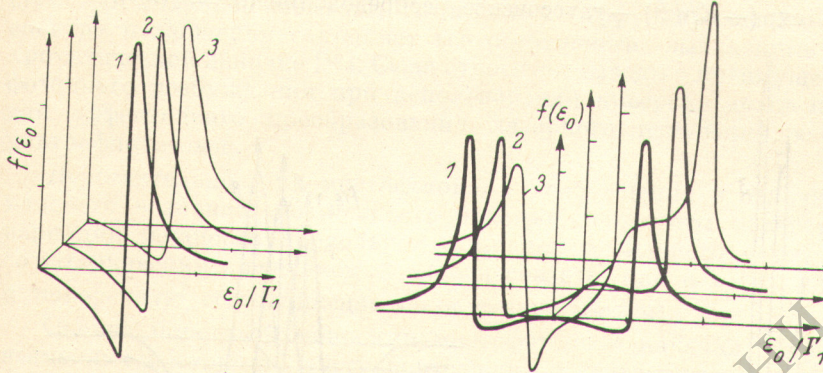


Рис. 1. Спектр поглощения слабого поля при двухфотонном воздействии шумового поля с диффундирующей фазой в условиях точного резонанса ($\delta_2 = 0$) при различной ширине шума.

$$1 - (1 - \gamma_2) \frac{\tau_{22}}{\tau_0} = 0.05; 2 - 0.1; 3 - 0.3.$$

Рис. 2. Спектр поглощения слабого поля при нерезонансном двухфотонном возбуждении фазомодулированным излучением.

$$1 - \delta_2 \tau_{22} = 0; 2 - 0.1; 3 - 0.5.$$

что согласуется с экспериментальными зависимостями, полученными при двухфотонном воздействии сильным монохроматическим полем [10].

Аналогичная зависимость формы линии поглощения слабого сигнала реализуется при повышении порядка многофотонной накачки: например, при трехфотонном возбуждении соответственно меняется лишь ширина $\Gamma_{02} \rightarrow \Gamma_{03}$, эффективность $K_2 \rightarrow K_3 = |V_0|^4 |V_1|^2$ периферийных компонент и штарковские сдвиги, а структура спектра поглощения остается неизменной, инвертируя знак на частотах

$$3\omega_1 - \omega_0 + \Delta_3 \approx V_1 \left(2 + \frac{|V_1|^2 |V_0|^4}{\epsilon_1^2 \epsilon_2^2 \epsilon_3^2} \right)^{1/2}.$$

Спектр поглощения при возбуждении амплитудно-модулированным полем

Излучение многомодовых лазеров на красителях, используемое в качестве накачки при генерации гармоник, можно описать в модели марковского амплитудно-модулированного шума с сохраняющейся памятью между отдельными реализациями амплитуды. Модуляция амплитуды марковским разрывным процессом сопровождается случайными некоррелированными изменениями фазы $f(\alpha, \alpha') = \varphi(\alpha)$. В этих условиях уравнения (3), (4) для элементов матрицы плотности (как функций случайной амплитуды) сохраняет свой вид с учетом замены времен релакса-

ции $1/\tau_{22}=1/\tau_2=1/T_2+1/\tau_0$, $1/\tau_{12}=1/\tau_1=1/T_1+1/\tau_0$, и добавлением в правую часть уравнения для заселенности (3) слагаемого

$$\frac{1}{\tau_0} \left[n^0(E_1) - \int n^0(E') R(E_1, E') dE' \right], \quad (7)$$

определяющего сохранение памяти случайного марковского поля на временном интервале τ_0 . При амплитудной модуляции ядро R в (7) имеет следующий вид [6] (усреднение по случайным фазам в уравнениях (6), (7) проведено ранее):

$$R(E_1, E'_1) = [\pi d^2 (1 - \eta^2)]^{-1/2} \exp \left[-\frac{(E'_1 - \eta E_1)^2}{d^2 (1 - \eta^2)} \right] \approx \varphi(E'_1) \exp \left(\frac{2\eta E_1 E'_1}{d^2} \right),$$

что справедливо в случае слабой корреляции амплитуд $\eta \ll 1$, где $\varphi(E'_1) = (\pi d^2)^{-1/2} \exp(-E_1'^2/d^2)$ — гауссовское распределение ($d^2 = \langle E_1'^2 \rangle$).

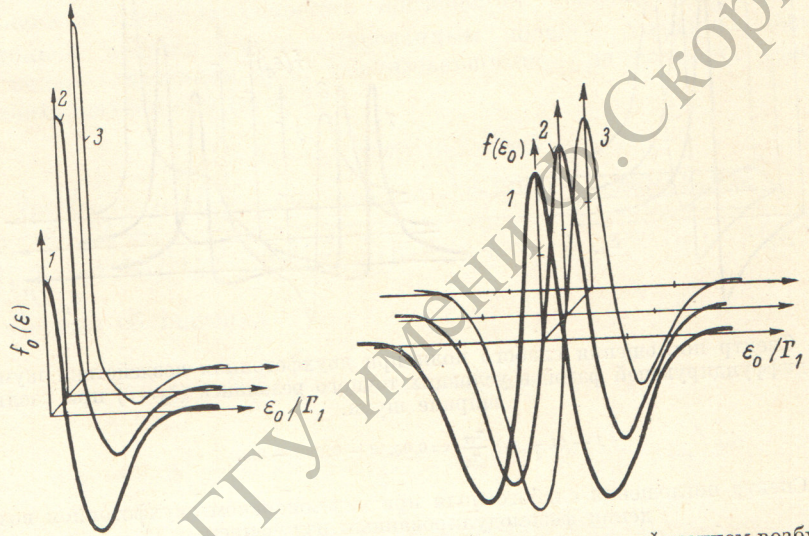


Рис. 3. Спектр поглощения пробного поля при резонансном двухфотонном возбуждении шумовым полем, модулированным по амплитуде и фазе.

$$1 - \frac{\tau_1}{\tau_2} = 0.2; 2 - 0.1; 3 - 0.05.$$

Рис. 4. Спектр поглощения при нерезонансной двухфотонной амплитудно-модулированной накачке.

$$1 - \delta_2 \tau_2 = 0; 2 - 0.25; 3 - 0.5.$$

Для вычисления средней мощности пробного поля воспользуемся выражением (5), считая компоненты возмущения V_1, V_0 случайными величинами $\langle V_1^2 \rangle = d_1^2$, $\langle V_0^2 \rangle = d_0^2$.

В приближении сильного поля $d_1^2, d_0^2 \gg 1/\tau_2^2$, когда штарковские сдвиги Δ_{22} от амплитуды не зависят, и в первом приближении по параметру малости η получаем оценку формы спектра поглощения

$$F(\omega_2) \approx \frac{\Gamma_1}{\Gamma_1^2 + \nu_2^2} \left[1 - \frac{\nu_1^2 \tau_2^2}{d_1^2} \exp \left(-\frac{\nu_1^2}{D_2^2} \right) (\Gamma_1 + \nu_1^2 \tau_2 + \zeta \nu_2 \nu_1^2) \right],$$

где введены следующие обозначения:

$$\nu_1 = \varepsilon_0 + \Delta_2, \quad \nu_2 = \varepsilon_2 + \sigma_2, \quad \zeta = \delta_2 \frac{1}{\tau_2} \left(\frac{1}{\tau^2} + \delta_2^2 \right)^{-2}.$$

Как и в случае фазомодулированной накачки, в резонансных условиях по полю накачки $2\omega_1 = \omega_0$ ($\delta_2 = 0$) форма спектра поглощения слабого поля представляет собой триплет (рис. 3), центральная компонента которого имеет лорентцовскую форму с шириной Γ_1 . Максимум отрицательных периферийных компонент гауссовской формы с шириной $D \simeq d_1 (1 - \eta_2 q \delta_1^2 / 2d_0^2)$, зависящей от коэффициента корреляции η , коэффициента

$q = \frac{1}{\tau_0} \left(\frac{1}{T_2} + \frac{1}{\tau_0} \right)^{-1}$ и средней интенсивности поля накачки d_1 , смещен на величину $\varepsilon_2 = \pm D - \Delta_2$ относительно центра спектра.

При отклонении от точного двухфотонного резонанса $2\omega_1 \neq \omega_0$ форма линии становится асимметричной и отрицательная компонента спектра поглощения проявляется более эффективно, чем при резонансном возбуждении (рис. 4).

Обсуждение результатов

Проведенный расчет спектральной структуры формы линии поглощения слабой монохроматической волны при многофотонном возбуждении шумовым полем, показывает, что в поле с диффундирующей фазой форма спектра поглощения сохраняет все особенности, выявленные при монохроматической накачке [10]. Сюда относятся выводы о преимуществе многофотонного возбуждения при использовании инверсии знака поглощения для эффективного преобразования лазерного излучения в вакуумное ультрафиолетовое.

Действительно, при многофотонном возбуждении в отличие от резонансного возникает возможность подстройки частоты инверсии за счет вариации мощности продольной компоненты сильного поля, связанной со штарковским смещением Λ_{jj} (если считать, как и в [10], продольную и поперечную составляющие поля независимыми).

Оценка пороговой мощности многофотонной накачки, определяющей возможность отрицательного поглощения и соответственно условие генерации высших гармоник, следует из равенства скорости многофотонного возбуждения

$$W_m = 2 |V_1|^2 |V_0|^{2(m-1)} |G_m|^2 \frac{1}{T_{2m}} \left(\frac{1}{T_{2m}^2} + \Omega_m^2 \right)^{-1}$$

и эффективной скорости релаксации атомов $1/T_{2m}$

$$|V_1| |V_0|^{m-1} |G_m| = \frac{1}{T_{2m}} \approx \frac{1}{T_2} + \frac{1 - \gamma_m}{\tau_0}.$$

В условиях, когда ширина шума $(1 - \gamma_m)/\tau_0$ и термическая ширина $1/T_2$ — величины одного порядка, оценка для пороговой мощности накачки не будет превышать рассчитанную для монохроматического режима [10].

В случае же широкополосной накачки $(1 - \gamma_m)/\tau_0 \gg 1/T_2$ пороговая мощность будет определяться лишь шириной шума

$$|V_1| |V_0|^{m-1} |G_m| = \frac{1 - \gamma_m}{\tau_0}.$$

При многофотонном возбуждении полем, модулированным по фазе и амплитуде, эффективность отрицательного поглощения выражена не столь явно, однако возможность усиления и генерации излучения сохраняется. Условие получения генерации теперь определяется соотношением между средней интенсивностью поля и эффективной частотой столкновительной релаксации ($T_1 = T_2 = T$): $d_1^2 = \left(\frac{1}{T} + \frac{1}{\tau_0} \right)^2 = \frac{1}{\tau^2}$. Поэтому при амплитудно-модулированной накачке возникает противоречие: чем лучше выполняется условие инверсии знака поглощения $d_1 \gg 1/\tau$, тем шире линия усиления (генерации), ширина которой пропорциональна d_1 . Тем не менее при выборе оптимальных условий эксперимента приведенные оценки подтверждают возможность усиления и генерации гармоник высоких порядков при многофотонном возбуждении ДС широкополосным излучением.

В последнее время широко обсуждается эффективность возбуждения атомов стохастическим полем с диффундирующей фазой, представляющим

собой марковский непрерывный процесс [16-18]. Особенность настоящей работы в том, что усреднение стохастических уравнений для матрицы плотности проведено для дискретного марковского процесса, позволяющего учесть частичную корреляцию фаз и переходящего в непрерывный марковский процесс при $1 - \gamma_m \ll 1$.

В заключение необходимо отметить, что интерес к изучаемой проблеме в значительной степени стимулирован идеями и работами В. А. Ходовой.

Литература

- [1] С. Г. Раутман, И. И. Собельман. ЖЭТФ, 41, 456, 1961.
- [2] N. Bloembergen, J. R. Shen. Phys. Rev., 133, A37, 1964.
- [3] П. А. Апанасевич. Опт. и спектр., 14, 612, 1963.
- [4] H. Kimble, L. Mandel. Phys. Rev., 13, 2123, 1967.
- [5] Ю. С. Оселедчик, А. И. Бурштейн. Ж. прикл. спектр., 21, 1042, 1974.
- [6] С. Г. Раутман. Тр. ФИАН, 43, 46, 1968.
- [7] П. А. Апанасевич. ДАН БССР, 12, 878, 1968.
- [8] А. М. Бонч-Бруевич, В. А. Ходовой, Н. А. Чигирь. ЖЭТФ, 67, 2069, 1974.
- [9] А. М. Бонч-Бруевич, С. Г. Прибельский, В. А. Ходовой, Н. А. Чигирь. ЖЭТФ, 70, 445, 1976.
- [10] В. А. Ходовой, Н. А. Чигирь. ЖЭТФ, 74, 67, 1978.
- [11] B. R. Mollow. Phys. Rev., A, 4, 1666, 1971; 5, 1827, 1972.
- [12] B. R. Mollow. Phys. Rev., 175, 1555, 1968.
- [13] G. S. Agarwal. Phys. Rev., A, 1, 1145, 1970.
- [14] H. P. Weber. I. E. E. Quant. Elect., 7, 189, 1971.
- [15] А. И. Бурштейн, Ю. С. Оселедчик. ЖЭТФ, 51, 1071, 1966.
- [16] G. S. Agarwal. Phys. Rev., A, 18, 1490, 1978.
- [17] A. T. Georges, P. Lambropoulos, P. Zoller. Phys. Rev. Lett., 42, 1609, 1979.
- [18] A. T. Georges, P. Lambropoulos. Phys. Rev. A, 20, 991, 1979.

Поступило в Редакцию 31 марта 1980 г.