

В.П. Кочанов

СПЕКТР ПОГЛОЩЕНИЯ ДВУХУРОВНЕВОГО АТОМА В ПРИСУТСТВИИ СИЛЬНОГО НЕРЕЗОНАНСНОГО ПОЛЯ

В рамках теории возмущений, развитой на основе теоремы Флоке–Ляпунова без использования приближения вращающейся волны, определен оператор эволюции двухуровневой квантовой системы, находящейся под воздействием нерезонансного монохроматического поля. Показано, что матричные элементы оператора эволюции, представляющие собой линейные комбинации волновых функций квазиэнергетических состояний, в отличие от последних дают возможность проследивать связь с исходными заселенностями невозмущенной полем системы.

С применением полученного оператора эволюции решена задача о стационарном спектре поглощения слабого монохроматического поля, резонансного двухуровневому атому. Показано, что в результате действия нерезонансного возмущающего поля происходит уменьшение силы линии поглощения пробного поля и при регистрации усредненного по времени сигнала контур линии в случае малых частот возмущающего поля содержит узкие провалы и пики, обнаружимые для микроволновых переходов.

1. Введение

Периодическое электромагнитное поле, действуя на атомы и молекулы, вследствие динамического эффекта Штарка изменяет энергии их состояний, и соответственно качественно изменяются спектры резонансного поглощения и флуоресценции. В случае достаточно интенсивных внешних полей искажения спектра поглощения пробного поля, с помощью которого тестируется переход атома, могут быть вполне ощутимы даже для нерезонансных внешних полей. Такая ситуация вполне реализуема, например, в микроволновой спектроскопии и в методе лазерной штарковской модуляционной спектроскопии [1, 2], где используются низкочастотные поля радиодиапазона.

Корректным способом описания подобной ситуации является применение формализма квазиэнергетических состояний (КЭС) [3–5], позволяющего рассчитать спектр собственных энергий атома в присутствии периодического поля без использования приближения вращающейся волны (ПВВ), неприменимого для низкочастотных полей.

Цель данной статьи заключается в определении влияния интенсивного нерезонансного (в том числе низкочастотного) электромагнитного поля на спектры линейного резонансного поглощения монохроматического пробного поля двухуровневой квантовой системой на основе строгой теории возмущений для нерезонансного внешнего поля [6].

2. Волновая функция двухуровневой системы в присутствии нерезонансного периодического поля

Разложим волновую функцию двухуровневой системы в присутствии поля по векторам собственных состояний:

$$\Psi(t) = a_m(t) | m \rangle + a_n(t) | n \rangle . \quad (2.1)$$

Подставляя (2.1) в уравнение Шредингера

$$i \Psi(t) = (\hat{H}_0 - \hat{d} \mathcal{E} \cos \omega t) \Psi(t) ; \quad \hbar \equiv 1 , \quad (2.2)$$

где \hat{H}_0 – гамильтониан невозмущенной системы; \hat{d} – оператор дипольного момента; \mathcal{E} и ω – напряженность электрического поля и частота световой волны, получим уравнения для амплитуд вероятностей a_m, a_n :

$$\begin{aligned}\dot{a}_m &= -i E_m a_m + i G \cos \omega t a_n, \\ \dot{a}_n &= -i E_n a_n + i G \cos \omega t a_m, \\ G &= d_{mn} \mathcal{E}, \quad d_{mn} = \langle m | \hat{d} | n \rangle,\end{aligned}\tag{2.3}$$

где E_m, E_n – энергии уровней.

Уравнение для оператора эволюции (матрицианта) системы (2.3) есть

$$\frac{d}{dt} \hat{X}(t) = \hat{K}_0 \hat{X}(t) + G \hat{D}(t) \hat{X}(t); \tag{2.4}$$

$$\hat{K}_0 \equiv -i \hat{H}_0 = -i \begin{pmatrix} E_m & 0 \\ 0 & E_n \end{pmatrix}, \quad \hat{D}(t) = i \cos \omega t \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{X}(0) = \hat{I}_2 \equiv \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}.$$

Согласно теореме Флоке–Ляпунова [6]

$$\hat{X}(t, D) = \hat{F}(t, G) e^{\hat{K}(G)t}, \quad \hat{F}(t + 2\pi/\omega) = \hat{F}(t). \tag{2.5}$$

Подстановка (2.5) в (2.4) дает уравнение для \hat{F} и \hat{K}_0

$$\frac{d}{dt} \hat{F}(t, G) = \hat{K}_0 \hat{F}(t, G) - \hat{F}(t, G) \hat{K}(G) + G \hat{D}(t) \hat{F}(t, G). \tag{2.6}$$

Теория возмущений по малому параметру G заключается в разложении

$$\begin{aligned}\hat{F}(t, G) &= \hat{I}_2 + G \hat{F}_1(t) + G^2 \hat{F}_2(t) + \dots, \\ \hat{K}(G) &= \hat{K}_0 + G \hat{K}_1 + G^2 \hat{K}_2 + \dots,\end{aligned}\tag{2.7}$$

и в последующем отыскании матриц \hat{F}_i, \hat{K}_i путем подстановки (2.7) в (2.6), которая приводит к системе матричных уравнений:

$$\begin{aligned}\frac{d\hat{F}_1}{dt} &= \hat{K}_0 \hat{F}_1 - \hat{F}_1 \hat{K}_0 - \hat{K}_1 + \hat{D}, \\ \frac{d\hat{F}_2}{dt} &= \hat{K}_0 \hat{F}_2 - \hat{F}_2 \hat{K}_0 - \hat{F}_1 \hat{K}_1 - \hat{K}_2 + \hat{D} \hat{F}_1, \\ &\dots\end{aligned}\tag{2.8}$$

Разлагая периодические по времени матрицы $\hat{F}_i(t), \hat{D}(t)$ в ряды Фурье:

$$\hat{F}_i(t) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} \hat{F}_i^{(m)} e^{im\omega t}, \quad \hat{D}(t) = \hat{D}^{(1)} e^{i\omega t} + \hat{D}^{(-1)} e^{-i\omega t}, \tag{2.9}$$

$$\hat{D}^{(1)} = \hat{D}^{(-1)} = \frac{i}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix},$$

равно как и (2.8), из преобразованного первого уравнения (2.8) для ненулевых гармоник ($m \neq 0$), находим все матрицы $\hat{F}_1^{(m)}$. Далее определяется матрица $\hat{F}_1^{(0)}$ из начальных условий (2.4), подстановка в которые разложения (2.9) приводит к связи

$$\hat{F}_1^{(0)} = - \sum_{\substack{m=-i \\ m \neq 0}}^i \hat{F}_1^{(m)}. \tag{2.10}$$

Затем из первого преобразованного уравнения (2.8) для $m = 0$ находится матрица \hat{K}_1 . Определив таким образом \hat{K}_1 и $\hat{F}_1^{(m)}$ для всех $m = -1, 0, 1$, переходим ко второму из уравнений (2.8), и процедура повторяется для второго и последующих порядков теории возмущений. В результате с точностью до второго порядка теории возмущений по полю получаем

$$\hat{K}(G) = -i \begin{pmatrix} E_m - G^2 k_2 & -G k_1 \\ -G k_1 & E_n + G^2 k_2 \end{pmatrix}; \quad (2.11)$$

$$k_1 = \frac{\omega_0^2}{\omega_0 - \omega}, \quad k_2 = \frac{\omega_0(\omega_0^2 + \omega^2)}{2(\omega_0 - \omega)^2}; \quad \omega_0 \equiv E_m - E_n.$$

$$\hat{F}(t, G) = \begin{pmatrix} 1 + \frac{1}{2} G^2 f_2 & G f_1 \\ -G f_1^* & 1 + \frac{1}{2} G^2 f_2^* \end{pmatrix}; \quad (2.12)$$

$$f_j = \sum_{m=-j}^j f_j^{(m)} e^{im\omega t}, \quad j = 1, 2,$$

$$f_1^{(\pm 1)} = \frac{1}{2(\omega_0 \pm \omega)}, \quad f_1^{(0)} = -\frac{\omega_0}{\omega_0 - \omega}, \quad f_1^{(\pm 2)} = \mp \frac{1}{4\omega(\omega_0 \mp \omega)},$$

$$f_2^{(\pm 1)} = \frac{\omega_0}{(\omega_0 - \omega)^2(\omega_0 \pm \omega)}, \quad f_2^{(0)} = -\frac{3\omega_0^2 + \omega^2}{2(\omega_0 - \omega)^2}.$$

Знаменатели формул (2.11), (2.12) содержат резонансные множители $\omega_0 - \omega$. Необходимое условие малости членов разложения (2.7), накладывающее ограничения на приближение частоты ω к резонансу первого порядка $\omega_0 \approx \omega$, есть

$$G \ll 2|\omega_0 - \omega|. \quad (2.13)$$

Обращение матричной экспоненты $\exp[\hat{K}(G)t]$ в (2.5) произведем с помощью формулы Сильвестра [6]:

$$\exp[\hat{K}(G)t] = \begin{pmatrix} (1-c)e_m + c e_n & -d(e_m - e_n) \\ -d(e_m - e_n) & (1-c)e_n + c e_m \end{pmatrix}, \quad (2.14)$$

$$c = G^2 \frac{\omega_0^2}{(\omega_0 - \omega)^2}, \quad d = G \frac{\omega_0}{\omega_0 - \omega}, \quad e_{m,n} = \exp[-i(E_{m,n} \pm \Delta)t], \quad \Delta = G^2 \frac{\omega_0}{2(\omega_0 - \omega)^2}.$$

Выполнив в (2.5) произведение матриц (2.12) и (2.14), получим окончательное решение (2.4) с точностью до второго порядка теории возмущений по полю G :

$$X_{11} = \left(1 + \frac{1}{4} G^2 \varphi_{e2}\right) e_m + \frac{1}{2} G^2 \varphi_{e1} \varphi_{o1} e_n, \quad X_{12} = -G \varphi_{e1} e_m + \frac{1}{2} G \varphi_{o1} e_n, \quad (2.15)$$

$$X_{21} = -\frac{1}{2} G \varphi_{o1}^* e_m + G \varphi_{e1} e_n, \quad X_{22} = \frac{1}{2} G^2 \varphi_{e1} \varphi_{o1}^* e_m + \left(1 + \frac{1}{4} G^2 \varphi_{e2}^*\right) e_n;$$

$$\varphi_{e1} = \frac{\omega_0}{\omega_0 - \omega}, \quad \varphi_{o1} = \frac{e^{-i\omega t}}{\omega_0 - \omega} + \frac{e^{i\omega t}}{\omega_0 + \omega}, \quad \varphi_{e2} = \frac{e^{-2i\omega t}}{2\omega(\omega_0 + \omega)} - \frac{3\omega_0^2 + \omega^2}{(\omega_0 - \omega)^2} - \frac{e^{2i\omega t}}{2\omega(\omega_0 - \omega)}.$$

Матрица \hat{X} (2.15) унитарна с точностью до G^2 и осуществляет переход от собственных состояний $|m\rangle, |n\rangle$ невозмущенной системы к представлению взаимодействия

$$\begin{pmatrix} |u\rangle \\ |l\rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} X_{11} & X_{12} \\ X_{21} & X_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |m\rangle \\ |n\rangle \end{pmatrix}, \quad (2.16)$$

где состояния $|u\rangle$ и $|l\rangle$ отвечают заселению при $t = 0$ уровней m и n соответственно.

Квазиэнергиями системы являются множители $E_m + \Delta$ и $E_n - \Delta$ в показателях экспонент e_m, e_n (2.14), (2.15). Из (2.16), (2.15) следует, что математически строгие решения для состояний $|u\rangle$ и $|l\rangle$, имеющие непосредственно прослеживаемую связь с исходными заселенностями невозмущенной полем системы, представляют собой линейные комбинации КЭС.

3. Спектр поглощения пробного поля двухуровневым атомом, возмущенным внешним нерезонансным полем

Для нахождения спектра поглощения пробного поля используем уравнения для матрицы плотности среды в модели релаксационных констант, полагая для простоты вычислений все константы релаксации равными и применяя приближение вращающейся волны для пробного поля:

$$\dot{\hat{\rho}} + \gamma \hat{\rho} = [\hat{K}_0 + V \hat{D}_\mu(t) + G \hat{D}(t), \hat{\rho}] + \gamma \hat{Q},$$

$$\hat{D}_\mu = i \begin{pmatrix} 0 & e_m \\ e_\mu^* & 0 \end{pmatrix}, \quad \hat{Q} = \begin{pmatrix} \rho_m^0 & 0 \\ 0 & \rho_n^0 \end{pmatrix}, \quad (3.1)$$

$$e_\mu = \exp(-i \omega_\mu t), \quad V = d_{mn} \mathcal{E}_\mu / 2,$$

где \mathcal{E}_μ и ω_μ – амплитуда и частота пробного поля; ρ_m^0 и ρ_n^0 – равновесные заселенности уровней m, n в отсутствие полей.

Переход к представлению взаимодействия (2.16) устраняет в явном виде возмущающее поле G из уравнений (3.1), которые после конкретизации с использованием (2.15) принимают вид

$$\dot{\rho} + \left(\gamma - \frac{4iVG\omega_0}{\omega_0 - \omega} \cos \delta t \right) \rho = iVn e^{-i\delta t} [1 - G^2 f(t)] + \gamma n_0 \frac{G\omega_0}{\omega_0 - \omega}; \quad (3.2)$$

$$\dot{n} + \gamma n = 4VRe i e^{-i\delta t} \rho [1 - G^2 f^*(t)] + \gamma n_0 [1 - G^2 \varphi(t)];$$

$$f(t) = \frac{e^{-2i\omega t}}{4\omega(\omega - \omega_0)} + \frac{3\omega_0^2 + \omega^2}{2(\omega_0 - \omega)^2} - \frac{e^{2i\omega t}}{4\omega(\omega_0 + \omega)} + \frac{\omega_0^2}{(\omega_0 - \omega)^2} e^{2i\delta t};$$

$$\varphi(t) = \frac{1}{2(\omega_0 - \omega)^2} \left(e^{-2i\omega t} + 2 \frac{3\omega_0^2 + \omega^2}{\omega_0 - \omega} + e^{2i\omega t} \right), \quad (3.3)$$

где $\rho = \rho_{ul}$ – недиагональный элемент матрицы плотности в ul -представлении (2.16); $n = \rho_{ll} - \rho_{uu}$ – разность заселенностей возмущенных полем G состояний $|u\rangle$ и $|l\rangle$; $\delta = \omega_\mu - \omega_0 - 2\Delta$ – отстройка частоты пробного поля от резонансной частоты перехода возмущенной полем G системы; величина Δ определена в соотношениях (2.14); $n_0 = \rho_n^0 - \rho_m^0$ равновесная (в отсутствие полей) разность заселенностей уровней.

Особенностями уравнений (3.2) являются перенесение результата действия возмущающего поля G на зависящие от времени коэффициенты, содержащие осциллирующие экспоненты с периодами, определяемыми частотой ω и отстройкой δ , появление постоянной по времени «накачки» поляризации, пропорциональной первой степени G (последний член первого уравнения (3.2)), и периодически зависящего от времени сдвига Блоха–Зигерта [7] (второй член в скобках левой части первого уравнения (3.2)), обусловленного интерференцией полей V и G . Отметим, что вследствие сделанного упрощающего предположения о равенстве всех констант релаксации системы после перехода к ul -представлению релаксационная часть осталась неизменной. Можно показать, что неравенство констант релаксации приводит к их зависимости от времени и поля G в ul -представлении, а также к появлению пропорциональных разностям этих констант кроссрелаксационных членов, дополнительно связывающих уравнения для заселенностей уровней и поляризации атома.

Работа пробного поля, которой пропорционален коэффициент поглощения пробного поля, в используемом представлении взаимодействия имеет вид

$$P = 2VRe i e_\mu^* [X_{11} X_{22}^* \rho + X_{21} X_{12}^* \rho^* - X_{11} X_{12}^* n]. \quad (3.4)$$

Стационарное решение (3.2), (3.4) в пределе слабых полей V есть

$$P = -\frac{2n_0 V^2 \gamma}{\gamma^2 + \delta^2} \left[1 - 2G^2 \frac{2\omega_0^2 + \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2} \right] - n_0 VG \left[\frac{2\omega_0 \sin \delta t}{\omega_0^2 - \omega^2} - \frac{\sin(\delta + \omega)t}{\omega_0 - \omega} - \frac{\sin(\delta - \omega)t}{\omega_0 + \omega} \right] - 2n_0 V^2 G^2 \operatorname{Re} \sum_{k=-2}^2 \left(A_k + \frac{B_k}{\gamma + i\delta} e^{2i\delta t} \right) e^{ik\omega t}; \quad (3.5)$$

$$A_0 = 0, \quad A_{\pm 1} = \frac{1}{\gamma - i\delta} \frac{\omega_0}{(\omega_0^2 - \omega^2)(\omega_0 \mp \omega)},$$

$$A_{\pm 2} = \mp \frac{1}{\gamma - i\delta} \frac{1}{4\omega(\omega_0 \mp \omega)} \pm \frac{1}{\gamma - i(\delta \mp 2\omega)} \frac{1}{4\omega(\omega_0 \pm \omega)} - \frac{\gamma}{(\gamma \pm 2i\omega) [\gamma - i(\delta \mp 2\omega)]} \frac{1}{2(\omega_0^2 - \omega^2)};$$

$$B_0 = \frac{3\omega_0^2 - \omega^2}{2(\omega_0^2 - \omega^2)}, \quad B_{\pm 1} = -(\gamma - i\delta) A_{\pm 1}, \quad B_{\pm 2} = \frac{1}{4(\omega_0 \mp \omega)^2}.$$

Отметим, что постоянная составляющая коэффициента поглощения (первая строка (3.5)) уменьшена равномерно по частоте пробного поля, что можно интерпретировать как дополнительное уширение уровней перехода за счет их «размывания» по спектру вследствие проявляющегося во втором порядке теории возмущений по G динамического эффекта Штарка. Величина уменьшения определяется интенсивностью внешнего поля и значениями ω_0 , $|\omega_0 - \omega|$. Оценки показывают, что подобное уменьшение, оставаясь в пределах малости теории возмущений, может быть вполне ощутимым в случае микроволновых переходов, а также для более коротковолновых (в том числе и оптических) переходов при $|\omega_0 - \omega| \ll \omega_0$.

Пропорциональная произведению амплитуд возмущающего и пробного полей интерференционная составляющая работы поля (вторая строка (3.5)) обусловлена совместным действиям постоянной накачки поляризации и динамического сдвига Блоха—Зигерта (см. обсуждение (3.2)) и осциллирует с частотами $|\delta|$, $|\delta \pm \omega|$. Квадратичная по амплитуде возмущающего поля добавка к коэффициенту поглощения содержит частоты ω , 2ω , $|2\delta \pm \omega|$ и $|2\delta \pm 2\omega|$.

Экспериментальная регистрация контура линии поглощения пробного поля сопряжена с усреднением сигнала по времени либо с выделением какой-либо из характерных частот осцилляций $P(t)$. В случае простого усреднения на интервале $[-T/2, T/2]$ для среднего значения работы поля из (3.5) имеем

$$\bar{P} = -\frac{2n_0 V^2 \gamma}{\gamma^2 + \delta^2} \left\{ 1 - 2G^2 \frac{2\omega_0^2 + \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2} + \frac{2G^2}{T} \left[\frac{3\omega_0^2 - \omega^2}{4(\omega_0^2 - \omega^2)^2} \frac{\sin T\delta}{\delta} - \frac{\omega_0 \sin T(\delta + \omega/2)}{2(\omega_0^2 - \omega^2)(\omega_0 - \omega)(\delta + \omega/2)} - \frac{\omega_0 \sin T(\delta - \omega/2)}{2(\omega_0^2 - \omega^2)(\omega_0 + \omega)(\delta - \omega/2)} + \frac{\sin T(\delta + \omega)}{8(\omega_0 - \omega)^2(\delta + \omega)} + \frac{\sin T(\delta - \omega)}{8(\omega_0 + \omega)^2(\delta - \omega)} \right] \right\}. \quad (3.6)$$

Интерференционная составляющая P в результате проведенного усреднения не дает вклада в \bar{P} . Из (3.6) видно, что при достаточно больших T усредненный по времени контур линии содержит узкие резонансы, максимальная относительная амплитуда которых определяется величиной членов второго порядка теории возмущений по внешнему полю. Амплитуды резонансов для отстроек частоты $\delta = 0$ и $\delta = \pm \omega$ положительны, а для $\delta = \pm \omega/2$ — отрицательны. В случае $\omega \ll \omega_0$ относительная амплитуда постоянной добавки в \bar{P} составляет $I_c = -4G^2/\omega_0^2$. Приняв ее модуль за единицу, для амплитуд резонансов имеем: $I_0 = 3/8$, $I_{\pm\omega/2} = -1/4$ и $I_{\pm\omega} = 1/16$. Для квазирезонанса $\omega_0 - \omega \equiv \Delta_0 \ll \omega_0$ соответственно получаем $I_c = -3/2 (G^2/\Delta_0^2) \Rightarrow -1$; $I_0 = 1/6$, $I_{-\omega/2} = -1/3$, $I_{-\omega} = -\Delta_0/(6\omega_0)$, $I_{-\omega} = 1/6$ и $I_{\omega} = \Delta_0/(24\omega_0)$. Таким образом, в этом случае резонансы для положительных расстроек частот $\delta = \omega/2$ и $\delta = \omega$ существенно подавлены.

Для малых частот $\omega \leq \gamma$ резонансы расположены в пределах контура линии $\bar{P}(\delta)$. Если же $\omega \geq (4 \div 5)\gamma$, то тогда резонансы проявляются как спутники линии, амплитуды которых дополнительно дискриминированы фактором $\gamma/(\gamma^2 + \delta^2)$. Последнее обстоятельство затрудняет экспериментальную регистрацию спутников в случае квазирезонанса $\omega_0 - \omega \ll \omega_0$ для больших частот ω_0 . Таким образом, оптимальными для наблюдения резонансов являются низкочастотные переходы.

В качестве других существенных для экспериментов особенностей резонансного поглощения слабого поля в присутствии сильного нерезонансного излучения отметим обсуждавшееся выше эффективное уменьшение силы линии, задаваемое фактором $1 - I_c$, и ее сдвиг в сторону меньших частот -2Δ .

1. Малов Л.Р., Мухтаров Р.И. //ЖПС. 1984. Т. 40. Вып. 2. С. 211–218.
2. Малов Л.Р., Мухтаров Р.И. //ЖПС. 1985. Т. 42. Вып. 5. С. 739–743.
3. Зельдович Я.Б. //ЖЭТФ. 1966. Т. 51. Вып 5(11). С. 1492–1495.
4. Ритус В.И. //Там же. С. 1544–1549.
5. Зельдович Я.Б. //УФН. 1973. Т. 110. Вып. 1. С. 139–151.
6. Якубович В.А., Старжинский В.М. Линейные дифференциальные уравнения с периодическими коэффициентами и их приложения. М.: Наука, 1972. 718 с.
7. Делоне Н.Б., Крайнов В.П. Атом в сильном поле. М.: Атомиздат, 1978. 312 с.

Институт оптики атмосферы СО РАН,
Томск

Поступила в редакцию
13 января 1997 г.

V. P. Kochanov. The Absorption Spectrum of Two-level Atom in the Presence of Strong Non-resonant Field.

Within the frameworks of a perturbation theory developed on the basis of Floquet–Liapunoff theorem, the operator of evolution of two-level quantum system under the influence of non-resonant monochromatic field is determined without the use of the rotating wave approximation. It is shown, that matrix elements of the evolution operator representing linear combinations of quasi-energy state wave functions give the opportunity to control the connection with starting level populations of the system non-perturbed by field, in contrary to quasi-energy wave functions.

With the use of the obtained evolution operator the problem of a stationary absorption spectrum of a weak monochromatic field resonant to two-level atom is solved. It is shown, that as a result of non-resonant perturbing field action, the probe field absorption line strength decreases, and when recording the time-averaged signal, for small frequencies of perturbing field the line profile contains narrow dips and peaks observable for microwave transitions.