

В.П. Кочанов

Влияние поляризуемости на насыщенное поглощение на запрещенных переходах атомов

Институт оптики атмосферы СО РАН, г. Томск

Поступила в редакцию 10.04.2007 г.

Развита теория насыщенного магнитодипольного и электрического квадрупольного поглощения монохроматического излучения на дипольно запрещенных переходах газовых сред. Показано, что в случае квазирезонанса поляризуемости, когда частота излучения близка к частоте перехода с верхнего уровня запрещенного перехода на вышележащее состояние, сдвиг линии поглощения на запрещенном переходе может достигать больших величин. Предсказана возможность усиления излучения без инверсии заселенностей на запрещенном и квазирезонансном переходах для достаточно больших интенсивностей излучения и малых отстройек частоты от собственной частоты квазирезонансного перехода.

Введение

Магнитодипольное и электрическое квадрупольное поглощение на запрещенных электродипольных переходах в атомарных газах и парах металлов может быть вполне ощутимым и насыщаться при небольших интенсивностях резонансного излучения в случае малых плотностей атомов. Причиной тому являются, как правило, большие времена жизни уровней запрещенных переходов, которые могут быть на три порядка величины больше времен жизни уровней дипольно разрешенных переходов [1], что компенсирует малую величину взаимодействия излучения с запрещенными переходами. На основе количественных измерений поглощения на запрещенных переходах возможно определение величин магнитного дипольного и электрического квадрупольного моментов атомов. Излучение, резонансное запрещенному переходу, может также использоваться в качестве замыкающего поля в задачах нелинейной оптики и нелинейной спектроскопии, основанных на кольцевом смещении частот [2, 3]. Оценим порядок величины интенсивности насыщения I_{sat} из условия равенства параметра насыщения к единице, считая поглощение магнитодипольным:

$$\kappa \equiv \frac{I}{I_{sat}} = \frac{1}{\Gamma\gamma} \left(\frac{mB}{\hbar} \right)^2 = 1, \quad I_{sat} = \frac{c\hbar^2\Gamma\gamma}{8\pi m^2}, \quad (1)$$

где I — интенсивность излучения; B — магнитная индукция световой волны; γ и Γ — продольная и поперечная константы релаксации запрещенного перехода; m — матричный элемент оператора магнитного дипольного момента; c — скорость света; \hbar — постоянная Планка. Принимая $m \sim \mu_B \sim 10^{-20}$ СГСЭ, где μ_B — магнетон Бора, $\gamma \sim \Gamma \sim 10^7$ с⁻¹, из (1) получаем $I_{sat} \sim 1$ Вт/см². Интенсивности излу-

чения импульсных лазеров, применяемых в спектроскопии газовых сред, часто составляют ~ 1 МВт/см² и более.

Таким образом, вполне реально осуществление нелинейной спектроскопии запрещенных переходов атомов. В связи с этим возникает необходимость корректного описания насыщенного поглощения на запрещенных переходах на основе квантовых кинетических уравнений для матрицы плотности среды, обычно применяемых в нелинейной спектроскопии. Вместе с тем в литературе такое описание, насколько известно автору, отсутствует. Вероятной причиной этого является нетривиальный характер взаимодействия излучения с запрещенными переходами, в котором принимают участие одновременно электрическая и магнитная составляющие световой волны. Обычно в этом случае применяют вектор-потенциал поля и плотность тока. Однако для нерезонансных взаимодействий, например, в случае вынужденного комбинационного рассеяния, такой способ описания дает результаты, заметно отличающиеся от тех, к которым приводит описание на основе наблюдаемых напряженностей электрического поля и магнитной индукции и магнитного дипольного и электрического квадрупольного моментов атома [4–6]. Физическая природа этого различия до сих пор окончательно не выяснена. Кроме того, в большинстве монографий (например, [7, 8]) мультипольное взаимодействие атома с полем излучения приводится только для случая сферических волн и выражено через вектор-потенциал. Такое представление оптимально для использования в расчетах радиационных времен жизни состояний атомов [9]. Но в большинстве задач лазерной спектроскопии необходимо иметь гамильтониан взаимодействия атома с плоскими волнами. Вывод гамильтониана для плоской классической волны, представленной в комплексном виде, произведен в [10]. Но для описания нерезонансных взаимодей-

ствий в случаях, когда неприменимо приближение вращающейся волны (ПВВ), требуется действительная форма представления поля. Вывод соответствующего описания для газовых сред приводится в разд. 1 данной статьи.

Поскольку в исследованиях насыщенного поглощения на запрещенных переходах предполагается использование излучения импульсных лазеров с достаточно большой интенсивностью, необходимо выяснить, каким образом и насколько на это поглощение влияют смежные с рассматриваемым переходом с уровня 1 на уровень 2 нерезонансные разрешенные переходы на уровень 3, т.е. поляризуемость атома. Особенно заметным такое влияние может быть в условиях квазирезонансов

$$\omega_{31} - 2\omega \approx \omega_{32} - \omega \sim \Delta,$$

где $\omega \approx \omega_{21}$ — частота излучения; ω_{21} — частота запрещенного перехода; ω_{31} и ω_{32} — частоты нерезонансных разрешенных переходов; Δ — некоторая критическая отстройка частоты, подлежащая определению (рисунок).

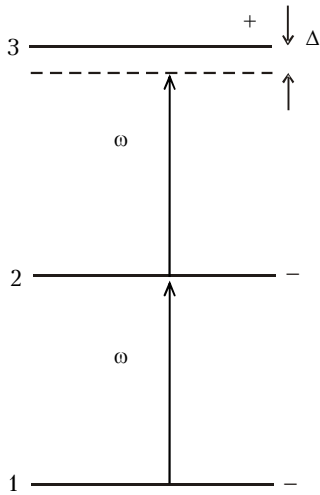


Схема взаимодействия излучения с частотой ω с резонансным дипольно запрещенным переходом 1–2 и нерезонансным разрешенным переходом 2–3. Четности уровней 1, 2 и 3 условно помечены знаками «+» и «-»

Относительно небольшая величина Δ может существовать как для переходов с основного состояния 1 на первый метастабильный уровень 2 (например, для атома меди [11]), так и для «горячих» запрещенных переходов атомов с возбужденных состояний в плазме газового разряда. При больших интенсивностях излучения величина взаимодействия поля с дипольно разрешенными переходами значительно больше, чем с запрещенным переходом, так что вполне возможно преодоление отстройки Δ . Как следствие, запрещенный переход перестает быть изолированной системой и данное обстоятельство нужно учитывать при сопоставлении теории с экспериментами. Определение характера и степени влияния поляризуемости на поглощение на запрещенном переходе на основе соответствующей теории производится в разд. 2.

Влияние поляризуемости на насыщенное поглощение на запрещенных переходах атомов

2. Оптика атмосферы и океана, № 9.

1. Магнитодипольное и электрическое квадрупольное взаимодействие плоской световой волны с запрещенным переходом

Вывод гамильтониана взаимодействия поля с запрещенным переходом произведем по общепринятой схеме [7, 8, 10], положив в основу силу Лорентца [12], содержащую наблюдаемые напряженность электрического поля \mathcal{E} и магнитную индукцию \mathcal{B} световой волны:

$$\mathbf{F} = e\mathcal{E} + \frac{e}{c}[\mathbf{v}\mathcal{B}], \quad (2)$$

где e и \mathbf{v} — заряд и скорость электрона в атоме; квадратные скобки обозначают векторное произведение. Векторы \mathcal{E} и \mathcal{B} запишем в виде

$$\begin{aligned} \mathcal{E}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{E}(\xi)\cos\Psi, & \mathcal{B}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{B}(\xi)\cos\Psi; \\ \Psi &\equiv \omega t - \mathbf{k}\mathbf{r}, & \xi &\equiv \mathbf{n}\mathbf{r} - \omega t/k, & \mathbf{n} &= \mathbf{k}/k, \end{aligned} \quad (3)$$

где \mathbf{k} — волновой вектор волны.

Радиус-вектор \mathbf{r} представим как

$$\mathbf{r} = \mathbf{r}_0 - \mathbf{r}_1, \quad |\mathbf{r}_1| \approx a_0, \quad (4)$$

где \mathbf{r}_0 — расстояние до центра атома; \mathbf{r}_1 задает положение электрона в атоме; a_0 — радиус Бора.

Потенциал взаимодействия определяется посредством соответствующего преобразования и анализа матричного элемента от энергии взаимодействия электронов в атоме с полем световой волны $U = -\mathbf{r}_1\mathbf{F}$ [7, 8, 10, 12] (предполагаемую сумму по электронам опустим). Вследствие того что за основу описания взята сила Лорентца, необходимые преобразования сводятся к разложению фазы Ψ и амплитуды \mathbf{E} электрического поля в ряд по малому \mathbf{r}_1 с сохранением только первых степеней малости. Для магнитного поля такого разложения не требуется, поскольку отношение второго слагаемого в (2) к первому мало, порядка постоянной тонкой структуры. Применяя (2)–(4), для матричного элемента от потенциала взаимодействия имеем

$$\begin{aligned} U_{mn} &= -e \int \Psi_m^* \left\{ \mathbf{r}_1 \left[\mathcal{E}_0 - (\mathbf{k}\mathbf{r}_1)\mathbf{E}(\xi_0)\sin\Psi_0 + \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \frac{1}{k} \frac{d\mathbf{E}(\xi_0)}{d\xi_0} \cos\Psi_0 \right] + \frac{1}{c} [\mathbf{r}_1\mathbf{v}]\mathcal{B} \right\} \Psi_n d\mathbf{r}_1 = \\ &= -e \int \Psi_m^* \left[\mathbf{r}_1\mathcal{E}_0 - \mathbf{r}_1(\mathbf{r}_1\nabla)\mathcal{E}_0 + \frac{1}{c} [\mathbf{r}_1\mathbf{v}]\mathcal{B} \right] \Psi_n d\mathbf{r}_1. \end{aligned} \quad (5)$$

Индекс «0» у различных величин означает, что в этих величинах положено $\mathbf{r} = \mathbf{r}_0$. Дифференциальный член в (5) соответствует электрическому квадрупольному взаимодействию.

Согласно определениям электрического и магнитного дипольных моментов и электрического квадрупольного момента [10, 12] трем слагаемым в интеграле (5) соответствуют операторы

$$\begin{aligned} e\mathbf{r}_1 &\rightarrow \hat{\mathbf{d}}, \quad e\mathbf{r}_1(\mathbf{r}_1\nabla) \rightarrow \frac{1}{6}(\hat{\mathbf{Q}}\nabla), \\ e\mathbf{v} &\rightarrow \hat{\mathbf{j}}, \quad \frac{1}{c}[\mathbf{r}_1\hat{\mathbf{j}}] = \hat{\mathbf{m}} \rightarrow \hat{\mathbf{m}} + \hat{\mathbf{s}}, \end{aligned} \quad (6)$$

где $\hat{\mathbf{d}}$ и $\hat{\mathbf{Q}}$ – операторы электрических дипольного и квадрупольного моментов; $\hat{\mathbf{j}}$ – оператор плотности тока; $\hat{\mathbf{m}}$ – оператор орбитального магнитного дипольного момента, к которому следует добавить спин $\hat{\mathbf{s}}$. Таким образом, оператор взаимодействия излучения плоской волны с атомом имеет вид

$$\hat{U} = -\hat{\mathbf{d}}\mathcal{E} - \hat{\mathbf{m}}\mathcal{B} + \frac{1}{6}(\nabla\hat{\mathbf{Q}})\mathcal{E}. \quad (7)$$

При замене $\nabla \rightarrow i\mathbf{k}$, проводимой в случае использования комплексного представления поля и резонансного приближения вращающейся волны, формула (7) совпадает с выражением для оператора взаимодействия, приведенным в [10].

Заметим, что правила отбора при вычислении матричных элементов от операторов магнитного дипольного и электрического квадрупольного моментов в общем случае различаются [13], но для многих дипольно запрещенных переходов одновременно отличны от нуля матричные элементы обоих этих моментов. Именно такая ситуация рассматривается в дальнейшем.

Обратимся теперь к волновым уравнениям. Будем исходить из первых двух уравнений Максвелла, описывающих волны в поглощающих средах без сторонних зарядов [14, 15]:

$$\begin{aligned} \text{rot}\mathcal{B} - \frac{1}{c}\frac{\partial\mathcal{E}}{\partial t} &= \frac{4\pi}{c}\frac{\partial\mathbf{P}}{\partial t} + 4\pi\text{rot}\mathbf{M}, \\ \text{rot}\mathcal{E} + \frac{1}{c}\frac{\partial\mathcal{B}}{\partial t} &= 0. \end{aligned} \quad (8)$$

Здесь \mathbf{P} – поляризация; \mathbf{M} – намагниченность среды.

Рассмотрим для определенности линейно поляризованное излучение. Ось z , как это принято в задачах с квантованием среды, возьмем параллельной направлению амплитуды электрического поля \mathcal{E} . Тогда волновой вектор \mathbf{k} будет направлен вдоль оси y , а магнитная индукция \mathcal{B} – вдоль оси x . Таким образом, векторы электрической и магнитной составляющих световой волны представляются как

$$\begin{aligned} \mathcal{E} &= (0, 0, E(y)\cos\Psi); \\ \mathcal{B} &= (B, 0, 0), \quad B = B_c(y)\cos\Psi + B_s(y)\sin\Psi, \\ \Psi &= \omega t - ky. \end{aligned} \quad (9)$$

Из второго уравнения (8) и (9) получаем точное выражение магнитной индукции через амплитуду электрического поля

$$\begin{aligned} B &= \frac{c}{\omega} \left(kE\cos\Psi - \frac{dE}{dy}\sin\Psi \right), \\ B_c &= \frac{ck}{\omega}E, \quad B_s = -\frac{c}{\omega}\frac{dE}{dy}. \end{aligned} \quad (10)$$

Аналогично (9) поляризацию и намагниченность определим как

$$\begin{aligned} \mathbf{P} &= (0, 0, P), \quad P = P_c\cos\Psi + P_s\sin\Psi; \\ \mathbf{M} &= (M, 0, 0), \quad M = M_c\cos\Psi + M_s\sin\Psi. \end{aligned} \quad (11)$$

Подставляя (9)–(11) в (8) и пренебрегая вторыми производными от медленных амплитуд по координате, путем приравнивания нулю коэффициентов при $\sin\Psi$ и $\cos\Psi$ (что эквивалентно усреднению по быстрым осцилляциям фазы) получаем два уравнения:

$$\begin{aligned} 2k\frac{dE}{dy} &= -\frac{4\pi\omega^2}{c^2} \left(P_s + \frac{kc}{\omega}M_s - \frac{c}{\omega}\frac{dM_c}{dy} \right); \\ \left(k^2 - \frac{\omega^2}{c^2} \right) E &= \frac{4\pi\omega^2}{c^2} \left(P_c + \frac{kc}{\omega}M_c + \frac{c}{\omega}\frac{dM_s}{dy} \right). \end{aligned} \quad (12)$$

Первое уравнение (12) есть волновое уравнение для медленной амплитуды электрического поля, а второе – дисперсионное уравнение, из которого определяется зависимость волнового числа или показателя преломления $n_d \equiv kc/\omega$ от частоты. Так как при поглощении на разрешенных переходах в газах при атмосферном давлении отличие показателя преломления n_d от единицы незначительно и составляет 10^{-3} – 10^{-4} [16], а для запрещенных переходов эта величина еще на 4–6 порядков величины меньше, то с хорошей точностью выполняется $n_d = 1$. Таким образом, пренебрегая дисперсией при поглощении на запрещенных переходах, имеем $k = \omega/c$. Такую же малую величину имеют поправки в (10), (12), связанные с производными амплитуд по координате, поскольку эти производные входят в уравнения с множителем $\lambda = c/\omega$.

Считая изменения амплитуд малыми на размерах порядка длины волны λ и отбрасывая эти производные, из (10) имеем жесткую связь магнитной компоненты световой волны с электрической:

$$B_c \cong E, \quad B_s \cong 0, \quad B \cong E\cos\Psi. \quad (13)$$

Вследствие этой связи для определения поглощения на запрещенном переходе достаточно решения только первого уравнения (12) для амплитуды электрического поля. При этом выражение для интенсивности излучения I остается прежним: $I = cE^2/(8\pi)$. Первое уравнение (12) в результате сделанных приближений приобретает простой вид, совпадающий с видом волнового уравнения для медленной амплитуды в случае поглощения на дипольно разрешенных переходах. Различие заключается лишь в том, что в правую часть первого уравнения (12) вместо части поляризации P_s , связанной с синусом, входит сумма этой поляризации с намагниченностью M_s :

$$\begin{aligned} 2\frac{dE}{dy} &= -\frac{4\pi\omega}{c}P_s, \\ P_s &\equiv P_s + M_s. \end{aligned} \quad (14)$$

Величина $P = P_s\sin\Psi + P_c\cos\Psi$ определяется как квантовое среднее от оператора эффективного

дипольного момента \hat{D} , который может быть определен на основании гамильтониана взаимодействия (7) с учетом (13). Такое определение произведем после анализа уравнений для матрицы плотности двухуровневой квантовой системы.

В рассматриваемом случае квантовая система состоит из нижнего и верхнего уровней 1 и 2, переход между которыми запрещен для электрического дипольного взаимодействия и разрешен для магнитного дипольного и электрического квадрупольного взаимодействий. Отличный от нуля недиагональный матричный элемент от гамильтониана взаимодействия (7) представим в виде

$$\begin{aligned} -U_{12} &= m_{12}\mathcal{B} - \frac{1}{6}Q_{12}\nabla\mathcal{E} = E\left(m_{12} - \frac{1}{6}Q_{12}\nabla\right)\cos(\omega t - ky) = \\ &= E\left[m_{12}\cos(\omega t - ky) - \frac{1}{6}kQ_{12}\sin(\omega t - ky)\right] = \\ &= E(m\cos\Psi - q\sin\Psi) \equiv U, \end{aligned} \quad (15)$$

$$m \equiv m_{12}, \quad q \equiv \frac{1}{6}kQ_{12}.$$

В соответствии со сделанными приближениями производная медленной амплитуды по координате здесь не учитывается и градиент ∇ действует только на фазу Ψ .

Уравнения для матрицы плотности рассматриваемой двухуровневой системы в модели релаксационных констант для однородного уширения имеют вид

$$\begin{cases} \dot{n} + \gamma n = \gamma n_0 + \frac{4}{\hbar}U \operatorname{Re} i\rho_{21}, \\ \dot{\rho}_{21} + (\Gamma + i\omega_{21})\rho_{21} = \frac{i}{\hbar}Un, \end{cases} \quad (16)$$

$$n \equiv \rho_1 - \rho_2.$$

Здесь n — разность заселенностей уровней 1 и 2; n_0 — равновесная разность заселенностей; ρ_{21} — недиагональный матричный элемент матрицы плотности или, с точностью до множителя, поляризация запрещенного перехода.

Перейдем от (16) к стационарным уравнениям с помощью выделения быстрых осцилляций поляризации перехода ρ_{21} :

$$\rho_{21} = r e^{-i\Psi}, \quad r = r' + ir''. \quad (17)$$

После подстановки (17) в (16) и применения ПВВ получим

$$\begin{cases} n + \frac{2E}{\hbar\gamma}(mr'' + qr') = n_0, \\ (\Gamma - i\delta)r = \frac{iE}{2\hbar}(m - iq)n, \end{cases} \quad (18)$$

$$\delta \equiv \omega - \omega_{21}.$$

Сравним (18) с аналогичными стационарными уравнениями для двухуровневой системы в случае, когда переход 1—2 дипольно разрешен:

$$\begin{cases} n - \frac{2E}{\hbar\gamma}\operatorname{Re}(iD_{12}r) = n_0, \\ (\Gamma - i\delta)r = \frac{iE}{2\hbar}d_{21}n. \end{cases} \quad (19)$$

Из сравнения (18) и (19) следует, что вид этих двух систем уравнений совпадает, если матричные элементы от оператора эффективного дипольного момента \hat{D} определить как комплексные величины

$$D_{21} = m - iq, \quad D_{12} = m + iq. \quad (20)$$

Действительно, для величины $\operatorname{Re}(iD_{12}r)$, пропорциональной работе поля [17] или величине P_s , из (20) имеем

$$-\operatorname{Re}(iD_{12}r) = -\operatorname{Re}[i(m + iq)(r' + ir'')] = mr'' + qr', \quad (21)$$

что совпадает с выражением в скобках в первом уравнении (18). Соответственно квантовое среднее от оператора эффективного дипольного момента или обобщенная макроскопическая поляризация среды применительно к поглощению на запрещенном переходе могут быть записаны в виде

$$\begin{aligned} P &= N \operatorname{Sp} \hat{D} \hat{\rho} = N(D_{12}\rho_{21} + D_{21}\rho_{12}) = 2N \operatorname{Re}(D_{12}\rho_{21}) = \\ &= 2N \operatorname{Re}[(m + iq)(r' + ir'')(\cos\Psi - i\sin\Psi)] = \\ &= 2N[(mr'' - qr'')\cos\Psi + (mr'' + qr')\sin\Psi]; \end{aligned} \quad (22)$$

$$P_s = 2N(mr'' + qr').$$

Здесь N — плотность взаимодействующих с излучением атомов.

Решение (18) есть

$$n = n_0 \frac{\Gamma^2 + \delta^2}{\operatorname{Det}}; \quad r' = \frac{n_0 E}{2\hbar} \frac{\Gamma q - \delta m}{\operatorname{Det}}; \quad r'' = \frac{n_0 E}{2\hbar} \frac{\Gamma m + \delta q}{\operatorname{Det}}; \quad (23)$$

$$\operatorname{Det} = \Gamma^2(1 + \kappa) + \delta^2, \quad \kappa = \frac{(m^2 + q^2)E^2}{\hbar^2\Gamma\gamma}.$$

Из выражения для параметра насыщения κ (23) видно, что он такой же, как и в случае поглощения на разрешенном переходе, но роль квадрата дипольного момента в нем выполняет квадрат модуля матричного элемента эффективного дипольного момента (20), $|D_{12}|^2 = m^2 + q^2$. Подстановка (22) и (23) в (14) дает выражение для коэффициента насыщенного поглощения на дипольно запрещенном переходе

$$\alpha = \frac{4\pi\omega}{c} \frac{P_s}{E} = \frac{4\pi N n_0 \omega \Gamma (m^2 + q^2)}{\Gamma^2(1 + \kappa) + \delta^2}. \quad (24)$$

Данная формула совпадает с формулой Карлуса—Швингера для коэффициента насыщенного

поглощения на разрешенном переходе [18] при замене в последней $d^2 \rightarrow m^2 + q^2$. Отметим, что в случае линейного поглощения в центре линии из (24) имеем $\alpha \propto (m^2 + q^2)/\Gamma$, в то время как для дипольно разрешенного перехода $\alpha \propto d^2/\Gamma_a$, где Γ_a – поперечная константа релаксации разрешенного перехода. Отношение $(m^2 + q^2)/d^2 \sim 10^{-4}$, в то время как $\Gamma/\Gamma_a \leq 10^{-2}$. Таким образом, коэффициент линейного поглощения для запрещенного перехода на 2–3 порядка величины меньше коэффициента поглощения на разрешенном переходе. Но отношение соответствующих параметров насыщения

$$\kappa/\kappa_a \propto [(m^2 + q^2)/d^2](\Gamma_a\gamma_a/\Gamma\gamma)$$

при $\gamma_a \sim \Gamma_a$, $\gamma \sim \Gamma$ и $\Gamma/\Gamma_a \leq 10^{-2}$ может быть порядка единицы. Об этом же говорят и произведенные во введении на основании (1) численные оценки. Другими словами, поглощение на запрещенном переходе значительно слабее, чем на разрешенном, но его насыщение достигается при таких же или ненамного бо́льших значениях интенсивности.

Из проведенного рассмотрения поглощения на запрещенном переходе явствует, что, несмотря на различие механизмов взаимодействия излучения с атомом, общая схема и результаты расчета коэффициента насыщенного поглощения остаются такими же, как и для поглощения на дипольно разрешенном переходе. Выявление этого подобия оказалось возможным в результате выражения магнитной индукции через напряженность электрического поля (13) и введения обобщенной поляризации среды, $P \rightarrow P + M \equiv \tilde{P}$ (14), (22), и обобщенного дипольного момента перехода, $d \rightarrow D$ (20). Произведем теперь некоторые дальнейшие преобразования введенных величин, которые позволят привести уравнения для матрицы плотности (18) к наиболее компактному виду, полностью совпадающему с (19). А именно: матричный элемент гамильтониана взаимодействия (15) запишем как

$$\begin{aligned} U &= E(m \cos \Psi - q \sin \Psi) = \sqrt{m^2 + q^2} E \times \\ &\times \left(\frac{m}{\sqrt{m^2 + q^2}} \cos \Psi - \frac{q}{\sqrt{m^2 + q^2}} \sin \Psi \right) = \\ &= \sqrt{m^2 + q^2} E (\cos \chi \cos \Psi - \sin \chi \sin \Psi); \quad (25) \\ U &= \mu E \cos(\Psi + \chi), \\ \mu &\equiv \sqrt{m^2 + q^2}, \quad \chi \equiv \arctg \frac{q}{m}. \end{aligned}$$

Данная форма записи выявляет то обстоятельство, что квадрупольное взаимодействие приводит к сдвигу фазы волны поляризации на величину χ . Это является следствием дифференциального характера оператора квадрупольного взаимодействия (7), (15) и в условиях резонансного взаимодействия (применимости ПВВ) приводит к комплексным матричным элементам от оператора эффективного дипольного момента (20). Максимальный сдвиг фазы χ равен $\pi/2$, и он достигается при равенстве нулю магнитного дипольного момента.

В аналогичной форме запишем также матричные элементы эффективного дипольного момента (20):

$$\begin{aligned} D_{12} &= m + iq = \sqrt{m^2 + q^2} \left(\frac{m}{\sqrt{m^2 + q^2}} + \frac{iq}{\sqrt{m^2 + q^2}} \right) = \\ &= \mu (\cos \chi + i \sin \chi) = \mu e^{i\chi}, \quad (26) \\ D_{21} &= \mu e^{-i\chi}. \end{aligned}$$

После этого для перехода от зависящих от времени уравнений для матрицы плотности (16) к стационарным уравнениям взамен (17) полагаем

$$\rho_{21} = r e^{-i(\Psi + \chi)}, \quad (27)$$

в результате чего вместо (18) получаем стационарные уравнения, полностью совпадающие с уравнениями (19) для дипольно разрешенного перехода:

$$\begin{cases} n + \frac{2\mu E}{\hbar\gamma} r'' = n_0, \\ (\Gamma - i\delta)r = \frac{i\mu E}{2\hbar}, \end{cases} \quad (28)$$

решение которых есть

$$\begin{aligned} n &= n_0 \frac{\Gamma^2 + \delta^2}{\text{Det}}; \quad r' = n_0 \frac{\mu E}{2\hbar} \frac{\delta}{\text{Det}}, \quad r'' = n_0 \frac{\mu E}{2\hbar} \frac{\Gamma}{\text{Det}}, \quad (29) \\ \text{Det} &= \Gamma^2 (1 + \kappa) + \delta^2, \quad \kappa = \frac{\mu^2 E^2}{\hbar^2 \Gamma \gamma}. \end{aligned}$$

Выражение для поляризации (22) в результате также упрощается:

$$\begin{aligned} P &= N(D_{12}\rho_{21} + D_{21}\rho_{12}) = \\ &= 2N \text{Re}(D_{12}\rho_{21}) = 2N \text{Re}[\mu e^{i\chi} r e^{-i(\Psi + \chi)}] = \\ &= 2N\mu [(r' + ir'')(\cos \Psi - i \sin \Psi)] = \\ &= 2N\mu (r' \cos \Psi + r'' \sin \Psi), \quad (30) \\ P_s &= 2N\mu r''. \end{aligned}$$

Подстановка (29) и (30) в выражение для коэффициента поглощения (24) с учетом определения μ (25), естественно, дает тот же самый результат.

2. Влияние поляризуемости

Характер и степень влияния поляризуемости на коэффициент насыщенного поглощения излучения на запрещенном переходе (24) определим на основе трехуровневой модели атома (см. рисунок). Уравнения для матрицы плотности трехуровневой Λ -системы применялись в [2] для описания двухволнового вынужденного комбинационного рассеяния, замкнутого излучением, взаимодействующим

с резонансным запрещенным переходом посредством магнитодипольного механизма. Обобщение этих уравнений на случай одновременного взаимодействия резонансного поля с магнитным дипольным и электрическим квадрупольным моментами атома, произведенное на основании результатов разд. 1, дает

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{\rho}_1 + \gamma(\rho_1 - \rho_1^0) = \frac{2}{\hbar}(d_1 \varepsilon \operatorname{Re} i \rho_{31} + U \operatorname{Re} i \rho_{21}), \\ \dot{\rho}_2 + \gamma(\rho_2 - \rho_2^0) = \frac{2}{\hbar}(d_2 \varepsilon \operatorname{Re} i \rho_{32} - U \operatorname{Re} i \rho_{21}), \\ \rho_1 + \rho_2 + \rho_3 = 1, \\ -i\dot{\rho}_{31} + \omega_{31}\rho_{31} = \frac{1}{\hbar}[\varepsilon(d_1 n_{13} + d_2 \rho_{21}) - U \rho_{32}], \\ -i\dot{\rho}_{32} + \omega_{32}\rho_{32} = \frac{1}{\hbar}[\varepsilon(d_2 n_{23} + d_1 \rho_{21}^*) - U \rho_{31}], \\ \dot{\rho}_{21} + (\Gamma + i\omega_{21})\rho_{21} = \frac{i}{\hbar}[U n_{12} + \varepsilon(d_2 \rho_{31} - d_1 \rho_{32}^*)], \\ n_{12} = \rho_1 - \rho_2, \quad n_{13} = \rho_1 - \rho_3 = 2\rho_1 + \rho_2 - 1, \\ n_{23} = \rho_2 - \rho_3 = \rho_1 + 2\rho_2 - 1, \\ \varepsilon = E \cos \Psi, \quad U = \mu E \cos(\Psi + \chi), \quad \Psi = \omega t - ky. \end{array} \right. \quad (31)$$

Здесь ρ_j , $j = 1, 2, 3$, — заселенности уровней; ρ_j^0 — равновесные заселенности уровней в отсутствие излучения; ρ_{31} и ρ_{32} — поляризации нерезонансных разрешенных переходов; ρ_{21} — поляризация резонансного запрещенного перехода; d_1 и d_2 — матричные элементы операторов электрических дипольных моментов на переходах 1–3 и 2–3 соответственно; ω_{ij} и n_{ij} — частоты и разности заселенностей уровней переходов i – j ; величины U , μ и χ определены соотношениями (25); Γ — поперечная константа релаксации поляризации запрещенного перехода. Стационарные уравнения получим из (31) с помощью ПВВ и выделения быстрых осцилляций поляризации:

$$\left\{ \begin{array}{l} \rho_{31} = R_1 \exp(-2i\Psi), \quad \rho_{32} = R_2 \exp(-i\Psi), \\ \rho_{21} = r \exp[-i(\Psi + \chi)]. \end{array} \right. \quad (32)$$

Подстановка (32) в (31) дает

$$\left\{ \begin{array}{l} \rho_1 + \frac{\mu E}{\hbar \gamma} r'' = \rho_1^0, \\ \rho_2 + \frac{d_2 E}{\hbar \gamma} R_2'' - \frac{\mu E}{\hbar \gamma} r'' = \rho_2^0, \\ R_1 = \frac{E}{2\hbar \Delta} e^{-i\chi} (d_2 r - \mu R_2), \\ R_2 = \frac{E}{2\hbar \Delta} (d_2 n_{23} - \mu R_1 e^{i\chi}), \\ (\Gamma - i\delta) r = \frac{iE}{2\hbar} (\mu n_{12} + d_2 R_1 e^{i\chi}), \end{array} \right. \quad (33)$$

Влияние поляризуемости на насыщенное поглощение на запрещенных переходах атомов

$$\Delta \equiv \omega_{31} - 2\omega \cong \omega_{32} - \omega, \quad \delta \equiv \omega - \omega_{21}.$$

Искомой величиной является определяющая коэффициент поглощения часть P_s обобщенной поляризации P (14), которая в рассматриваемом случае трехуровневого атома имеет вид:

$$\begin{aligned} P &= 2N \operatorname{Re}(d_1 \rho_{31} + d_2 \rho_{32} + \mu e^{i\chi} \rho_{21}) = \\ &= 2N [(d_2 R_2'' + \mu r'') \cos \Psi + (d_2 R_2'' + \mu r'') \sin \Psi]; \quad (34) \\ P_s &= 2N (\mu r'' + d_2 R_2''). \end{aligned}$$

В (34) опущены члены, осциллирующие с двойной частотой 2ω .

Из второго и третьего уравнений (33) в приближении $\kappa_\mu \equiv \left(\frac{\mu E}{2\hbar \Delta}\right)^2 \ll 1$, которое при интенсивности излучения 100 МВт/см^2 , величине $\mu \sim 10^{-20}$ СГСЭ и величине Δ в пределах от 1 до 10^3 см^{-1} является вполне удовлетворительным ($\kappa_\mu \sim 10^{-2-10^{-8}}$), имеем

$$R_1 = \frac{d_2 E}{2\hbar \Delta} e^{-i\chi} \left(r - \frac{\mu E}{2\hbar \Delta} n_{23} \right), \quad (35)$$

$$R_2 = \frac{d_2 E}{2\hbar \Delta} \left(n_{23} - \frac{\mu E}{2\hbar \Delta} r \right).$$

Подстановка (35) в (33) и переход от заселенностей уровней к разностям заселенностей в соответствии с (31) приводит к следующим уравнениям:

$$\left\{ \begin{array}{l} n_{12} + \xi V(2 + w)r'' = n_{12}^0, \\ n_{23} - \xi V(1 + 2w)r'' = n_{23}^0, \\ (1 - i\delta_1)r = iV(n_{12} - wn_{23}), \end{array} \right. \quad (36)$$

$$V \equiv \frac{\mu E}{2\hbar \Gamma}, \quad w \equiv \left(\frac{d_2 E}{2\hbar \Delta}\right)^2, \quad \xi \equiv \frac{2\Gamma}{\gamma}, \quad \delta_1 \equiv \frac{\delta + \Delta w}{\Gamma}.$$

При $w \rightarrow 0$ уравнения (36) с точностью до обозначений совпадают с уравнениями (28) для изолированного запрещенного перехода 1–2. Решение (36) есть

$$\begin{aligned} n_{12} &= \frac{1}{\text{Den}} \{ [1 + w(1 + 2w)W] n_{12}^0 + w(2 + w)W n_{23}^0 \}, \\ n_{23} &= \frac{1}{\text{Den}} \{ (1 + 2w)W n_{12}^0 + [1 + (2 + w)W] n_{23}^0 \}, \\ r &= r' + ir'' = \frac{V}{1 + \delta_1^2} \frac{-\delta_1 + i}{\text{Den}} (n_{12}^0 - wn_{23}^0), \\ \text{Den} &\equiv 1 + 2(1 + w + w^2)W, \quad W \equiv \frac{\xi V^2}{1 + \delta_1^2}. \end{aligned} \quad (37)$$

Из (35) имеем

$$R_2'' = -\frac{\mu d_2 E^2}{4\hbar^2 \Delta^2} r'' = -w \frac{\mu}{d_2} r''. \quad (38)$$

Подстановка (37), (38) и (34) в следующее из укороченных волновых уравнений (14) выражение для коэффициента поглощения

$$\alpha = \frac{4\pi\omega P_s}{c E} \quad (39)$$

дает окончательное выражение для коэффициента поглощения:

$$\alpha = \alpha_0 \frac{(1-\omega)(n_{12}^0 - \omega n_{23}^0)\Gamma^2}{\Gamma^2 [1 + 2\xi(1 + \omega + \omega^2)V^2] + (\delta + \omega\Delta)^2}, \quad (40)$$

$$\alpha_0 = \frac{4\pi N \mu^2 \omega}{c \hbar \Gamma}.$$

При $\omega \rightarrow 0$ (40) совпадает с (24), и, таким образом, влияние поляризуемости атома на насыщенное поглощение на запрещенном переходе полностью характеризуется одним параметром ω . Оценки величины параметра насыщения нерезонансного разрешенного перехода ω (36) для интенсивности излучения $I = 100$ МВт/см², $d_2 = 1$ Д и отстройки частоты $\Delta = 10$ см⁻¹ дают $\omega \approx 0,05$. Для меньшей отстройки частоты $\Delta = 1$ см⁻¹ параметр $\omega \propto 1/\Delta^2$ больше единицы: $\omega \approx 5$. Фактор $1 - \omega$ в числителе (40) при этом меняет знак, и коэффициент поглощения α становится отрицательным (предполагается, что равновесные разности заселенностей для переходов 1–2 и 2–3 соответствуют больцмановскому распределению и положительные, так же как и разность $n_{12}^0 - \omega n_{23}^0$). Другими словами, для достаточно больших интенсивностей излучения ~ 100 МВт/см² и малых отстроек частот $|\Delta| = |2\omega - \omega_{31}| \approx |\omega - \omega_{32}| \sim 1$ см⁻¹ в условиях квазирезонанса поляризуемости вместо поглощения на дипольно запрещенном переходе возможно усиление излучения.

Коэффициент усиления при $\omega \sim 2$ определяется малой величиной α_0 (40) и будет также малым. Например, для $N \sim 10^{17}$ см⁻³, $\mu \sim 10^{-20}$ СГСЭ, $\Gamma \sim 0,6 \cdot 10^9$ с⁻¹ и длины волны излучения $\lambda \sim 0,5 \cdot 10^{-4}$ см он составляет $\alpha \sim 2 \cdot 10^{-6}$ см⁻¹.

Более интересна сама возможность усиления излучения без инверсии заселенностей вследствие интерференции поляризаций запрещенного (r'') и квазирезонансного разрешенного (R_2') переходов, которая следует из формулы (34) для поляризации среды P_s . В отличие от нелинейной интерференции поляризаций А-атома в поле монохроматического излучения [19, 20], когда интерферируют поляризации резонансных разрешенных переходов, в данном случае осуществляется интерференция поляризаций резонансного запрещенного и квазирезонансного разрешенного переходов.

Ранее интерференция поляризаций на разрешенном и запрещенном переходах в литературе не рассматривалась. Предсказанное усиление излучения следует принимать во внимание в количественных измерениях коэффициентов поглощения и сил осцилляторов запрещенных переходов.

Влияние квазирезонансной поляризуемости на полевое уширение сводится к увеличению параметра насыщения κ (29). А именно, как видно из сравнения (40) и (29), параметр насыщения умножается на фактор $1 + \omega + \omega^2$, $\kappa \rightarrow (1 + \omega + \omega^2)\kappa$, что приводит к незначительному увеличению ширины линии при небольшой степени насыщения нерезонансного разрешенного перехода, когда $\omega < 1$. Наибольшее влияние поляризуемость оказывает на сдвиг линии.

Из (40) следует, что дополнительный полевой (интерференционный) сдвиг линии есть $\Delta\omega$. Его знак определяется знаком отстройки частоты Δ . Полевой сдвиг становится равным однородной полуширине линии Γ при значениях интенсивности I_s , в Δ/Γ раз меньших, чем интенсивность насыщения нерезонансного перехода, определяемая соотношением $\omega = 1$. Для приведенных выше значений $\Delta = 1$ см⁻¹ и $\Gamma = 100$ МГц $= 0,0033$ см⁻¹ величина $I_s = c\hbar\Gamma\Delta/(2\pi d_2^2)$ составляет 67 кВт/см².

Отметим, что определенная из условия $\Delta\omega/\Gamma = 1$ интенсивность I_s совпадает с интенсивностью насыщения двухволнового вынужденного комбинационного рассеяния [2] при замене в последней произведения $d_1 d_2$ на d_2^2 . Если интенсивность излучения $I = 100$ МВт/см², то для $\Delta = 1$ см⁻¹ полевой сдвиг $\Delta\omega$ будет равен 5 см⁻¹ $= 150$ ГГц, что на три порядка величины больше однородной полуширины линии $\Gamma = 100$ МГц. При такой интенсивности величина полевого сдвига сравнивается с Γ , т.е. полевой сдвиг будет вполне ощутимым, для весьма значительных отстроек частоты $\Delta \sim 10^3 - 10^4$ см⁻¹.

Таким образом, основное влияние поляризуемости атома на контур линии поглощения на запрещенном переходе в условиях квазирезонанса $|\omega - \omega_{32}| \sim 10 - 1000$ Г заключается в формировании большого (гигантского) полевого сдвига линии.

1. Груздев П.Ф. Вероятности переходов и радиационные времена жизни уровней атомов и ионов. М.: Энергоатомиздат, 1990. 223 с.
2. Кочанов В.П., Богданова Ю.В. Двухволновое вынужденное комбинационное рассеяние в поле интенсивного излучения, резонансного комбинационному переходу // Ж. эксперим. и теор. физ. 2003. Т. 123. № 2. С. 233–254.
3. Кочанов В.П., Мальцева Ю.В. Распределение заселенностей трехуровневой системы, взаимодействующей с тремя сильными резонансными полями // Оптика атмосф. и океана. 2000. Т. 13. № 5. С. 461–470.
4. Делоне Н.Б., Крайнов В.П. Атом в сильном поле. М.: Энергоатомиздат, 1984. 224 с.
5. Раутман С.Г. Нелинейная спектроскопия насыщения вырожденного электронного газа в сферических частицах металла // Ж. эксперим. и теор. физ. 1997. Т. 112. № 3(9). С. 836–855.
6. Быков В.П. Форма гамильтониана и начальные условия в излучательных задачах // Успехи физ. наук. 1984. Т. 143. № 4. С. 657–672.
7. Берестецкий В.Б., Лифшиц Е.М., Питаевский Л.П. Релятивистская квантовая теория. Ч. I. М.: Наука, 1968. 480 с.

8. Ахиезер А.И., Берестецкий В.Б. Квантовая электродинамика. М.: Наука, 1969. 623 с.
9. Никитин А.А., Рудзикас З.Б. Основы теории спектров атомов и ионов. М.: Наука, 1983. 320 с.
10. Блохинцев Д.И. Основы квантовой механики. М.: Высш. школа, 1961. 512 с.
11. Яценко А.С. Диаграммы Гроттриана нейтральных атомов. Новосибирск: Наука, 1993. 136 с.
12. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Теория поля. М.: Наука, 1967. 460 с.
13. Атомные и молекулярные процессы / Под ред. Д. Бейтса. М.: Мир, 1964. 778 с.
14. Бредов М.М., Румянцев В.В., Топтыгин И.Н. Классическая электродинамика. М.: Наука, 1985. 399 с.
15. Терлецкий Я.П., Рыбаков Ю.П. Электродинамика. М.: Высш. школа, 1990. 352 с.
16. Таблицы физических величин: Справочник / Под ред. И.К. Кикоина. М.: Атомиздат, 1976. 1006 с.
17. Раутиан С.Г., Смирнов Г.И., Шалагин А.М. Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул. Новосибирск: Наука, 1979. 310 с.
18. Karplus R., Schwinger I.A. Note on Saturation in Microwave Spectroscopy // Phys. Rev. 1948. V. 73. N 9. P. 1020–1026.
19. Зубова М.С., Кочанов В.П. Гигантский интерференционный сдвиг линии поглощения при переходе из основного расщепленного состояния // Ж. эксперим. и теор. физ. 1992. Т. 101. № 6. С. 1772–1786.
20. Кочанов В.П., Зубова М.С. Интерференционное подавление стационарного поглощения с ростом мощности излучения // Ж. эксперим. и теор. физ. 1994. Т. 105. № 3. С. 499–514.

V.P. Kochanov. The influence of polarizability on saturated absorption at forbidden atomic transitions.

The theory for saturated magnetic dipole and electric quadrupole absorption of monochromatic radiation at dipole-forbidden transitions of gas media is developed. It is shown that in the case of a quasi-resonant polarizability, when the radiation frequency is close to the frequency of the transition from the upper level of a forbidden transition to the inner upper state, the line shift for the absorption at dipole-forbidden transition can reach a large magnitude. The possibility of a radiation amplification without population inversion for dipole-forbidden and quasi-resonant transitions is predicted for sufficiently high intensities and small frequency offsets off the quasi-resonant transition eigenfrequency.