

НЕЛИНЕЙНЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ В АТМОСФЕРЕ И ОКЕАНЕ

УДК 535.33/34; 539.183/184

В.П. Кочанов

ОСЦИЛЛЯЦИИ В ИМПУЛЬСЕ РЕЗОНАНСНОЙ ФЛЮОРЕСЦЕНЦИИ, ИНИЦИИРОВАННОМ ГЛАДКИМ ИМПУЛЬСОМ НЕНАСЫЩАЮЩЕГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Проведено теоретическое исследование осцилляций в импульсе спонтанного испускания в линейном режиме поглощения гладкого колоколообразного импульса, возбуждающего резонансный атомный переход. Расчетным путем определены области существования осцилляций в зависимости от длительности импульса и отстройки его частоты от резонанса. Выявлена существенная зависимость формы и размера областей существования от скорости затухания индуцированного дипольного момента атома и отношения длительностей переднего и заднего фронтов возбуждающего импульса.

Исследование динамики квантовых систем, подверженных воздействию импульсного лазерного излучения, обусловлено потребностями широкого круга практических приложений. В основе таких приложений, как лазерная фото- и термохимия [1, 2], селективная фотодиссоциация молекул и фотонизация атомов [1–4], спектроскопия сложных молекул [2, 5] и многих других, лежит возможность создания значительной заселенности заданных возбужденных состояний атомов и молекул в определенный момент времени. Это достигается с помощью коротких и мощных резонансных импульсов лазеров. Применение таких импульсов приводит при определенных условиях также к весьма ощутимым когерентным эффектам, которые связаны с возбуждением поляризаций резонансных переходов на временах, меньших соответствующих времен релаксации.

Помимо влияния на динамику заселенностей, которое наблюдается, например, при интерференции различных каналов переходов в данное состояние [6], когерентные явления представляют собой большой самостоятельный интерес. В качестве примера достаточно привести фотонное эхо [2, 7, 8], самоиндуцированную прозрачность [2] и осцилляции Раби [7, 9, 10]. Не задаваясь целью произвести обзор большого числа посвященных им работ, отметим лишь, что упомянутые когерентные явления, равно как и заселенностные, вступают в действие при интенсивностях излучения порядка и больше насыщающей.

Значительно менее изучены проявления внутриатомной когерентности при интенсивностях лазерных полей, гораздо меньших требуемых для насыщения перехода. Одним из таких проявлений являются осцилляции в импульсе спонтанного испускания (заселенности верхнего комбинирующего с полем уровня) при возбуждении резонансного перехода гладким импульсом, несущая частота которого отстроена от собственной частоты перехода.

В простейшем варианте их наблюдение возможно в двухуровневом атоме. Существование таких осцилляций, отличающихся по своим свойствам от осцилляций Раби, было отмечено в работе [10] при обсуждении решения задачи о двухуровневой системе в присутствии экспоненциально возрастающего во времени резонансного излучения с отстройкой частоты от частоты перехода. Точное решение этой задачи для экспоненциально убывающего импульса [11] содержит данные осцилляции наряду с биениями заселенности, вызываемыми интенсивностью поля, однако их анализ и даже упоминание о них в [11] отсутствует.

Целью настоящей статьи является исследование осцилляций в импульсе-отклике спонтанного испускания замкнутой двухуровневой системы, возникающих при линейном поглощении импульса излучения, близкого по форме к реальным импульсам лазеров, в зависимости от длительности возбуждающего импульса, отстройки его несущей частоты от частоты перехода, соотношения констант релаксации системы и крутизны переднего и заднего фронтов.

Анализ ситуации будем производить с помощью стандартных уравнений для матрицы плотности $\hat{\rho}$ замкнутой двухуровневой системы в модели релаксационных констант и приближении вращающейся волны:

$$\begin{cases} \dot{R}' + \gamma R' + \Omega R'' = 0, \\ \dot{R}'' + \gamma R'' - \Omega R' + 2V(t) \rho_1 = V(t), \\ \dot{\rho}_1 + \gamma_1 \rho_1 - 2V(t) R'' = 0, \end{cases} \quad (1)$$

$$R' + iR'' = \rho_{10}, \quad \rho_0 + \rho_1 = 1, \quad \Omega = \omega - \omega_{10},$$

$$V(t) = d_{10} \varepsilon(t) / 2\hbar.$$

Здесь ρ_0 и ρ_1 — заселенности нижнего (0) и верхнего (1) уровней; ρ_{10} — недиагональный матричный элемент матрицы плотности, описывающий индуцированную полем поляризацию системы; $\varepsilon(t)$ — зависящая от времени огибающая амплитуды электрического поля световой волны; Ω — отстройка несущей частоты излучения ω от собственной частоты перехода ω_{10} ; d_{10} — матричный элемент дипольного момента перехода $0 \rightarrow 1$; γ_1 и γ — соответственно константы релаксации верхнего уровня и поляризации.

Обсуждение физической природы рассматриваемых осцилляций удобно произвести на примере прямоугольного импульса $V(t) = \theta(t)\theta(\tau-t)V$, где $\theta(t)$ — ступенчатая функция. В этом случае характеристическое уравнение для (1) при $0 < t < \tau$ имеет вид

$$(\lambda + \gamma_1)(\lambda + \gamma)^2 + 4V^2(\lambda + \gamma) + \Omega^2(\lambda + \gamma_1) = 0. \quad (2)$$

Кубическое уравнение (2) относительно характеристического показателя λ , сводится к квадратному в случае $\Omega = 0$ (точный резонанс), $V = 0$ («нулевое поле») и $\gamma = \gamma_1$ (равные константы релаксации). При решении системы (1) и подобных ей систем уравнений с зависящим от времени взаимодействием $V(t)$ наиболее часто рассматривается точный резонанс, что позволяет продвинуться дальше в аналитическом решении задачи [10]. При этом искомый отклик испытывает осцилляции Раби, частота которых определяется амплитудой V , а интересующие нас осцилляции при нулевом поле отсутствуют. В случае равных констант релаксации решение (1) содержит временные экспоненты с показателями

$$\lambda_1 = -\gamma_1, \quad \lambda_{2,3} = -\gamma_1 \pm i\Omega_R, \quad \Omega_R = \sqrt{\Omega^2 + 4V^2}, \quad (3)$$

в которых модуль мнимой части второго и третьего корней Ω_R есть классическая частота Раби, зависящая от отстройки частоты. Очевидно, в данном случае Ω и V входят в Ω_R симметрично и, следовательно, в равной мере определяют осцилляции решения.

Таким образом, механизм образования осцилляций, обусловленных как отстройкой частоты возбуждающего поля от резонанса, так и мощностью излучения, един и формально объясняется [7] прецессией псевдоспина атома ($R'/2, R''/2, \rho_0 - \rho_1$) вокруг вектора «вращающего момента» ($-2V, 0, \Omega$) с частотой Ω_R . Вместе с тем из (1) легко усмотреть также различие физической природы этих двух видов осцилляций. Действительно, осцилляции при $\Omega = 0$ возникают вследствие периодической миграции заселенности с уровня 0 на 1, и их период сравним с временами релаксации при насыщении перехода. Биения же при $V = 0$ обусловлены связью (интерференцией) между абсорбционной и дисперсионной компонентами индуцированного дипольного момента, т. е. всецело внутриатомной когерентностью, а их период определяется разностью между колебательной частотой системы ω_{10} и частотой ω «вынуждающей силы».

Как следует из (3), условием наблюдения осцилляций в линейном режиме поглощения, т. е. перехода к случаю нулевых полей, является

$$4V^2 \ll \Omega^2. \quad (4)$$

Решение (1) при $V \rightarrow 0$ для произвольных зависимостей $V(t)$ можно записать в виде

$$\rho_1(t) = e^{-\gamma_1 t} \int_0^t dt_1 e^{(\gamma_1 - \gamma)t_1} G(t_1) \int_0^{t_1} dt_2 e^{\gamma t_2} G(t_2) \cos \Omega(t_1 - t_2), \quad (5)$$

$$G(t) = V(t) \sqrt{2}.$$

Дальнейшее рассмотрение будем производить с привлечением конкретной часто употребляемой формы импульса $G(t)$:

$$G(t) \sim e^{-\alpha t} - e^{-\beta t}, \quad \beta > \alpha > 0. \quad (6)$$

Максимум $G(t)$ (6) расположен при $t = t_{\max}$,

$$t_{\max} = (\ln \beta - \ln \alpha) / (\beta - \alpha), \\ G(t_{\max}) = r / (1 + r)^{1+1/r}, \quad r = \beta / \alpha - 1, \quad (7)$$

а ширина $G(t)$ на полувысоте аппроксимируется с погрешностью 0,6% выражением

$$\tau_1 = \frac{1}{\alpha} \ln [2 + 7\alpha/\beta + 2,5(\alpha/\beta)^2]. \quad (8)$$

При $r \rightarrow \infty$ $G(t)$ (6) сводится к экспоненциально убывающему импульсу $\exp(-at)$, рассмотренному в [11]. При $\beta \rightarrow \alpha$ ($r \rightarrow 0$) двухэкспоненциальный импульс (6) переходит в экспоненциально-степенной $t \exp(-at)$ с более пологим передним фронтом. Регистрируемая в экспериментах огибающая интенсивности $\sim G^2(t)$ имеет то же значение t_{\max} и ширину на полувысоте τ_2 , аппроксимируемую с погрешностью 1,6% формулой

$$\tau_2 = \frac{1}{\alpha} \ln [V\sqrt{2} + 4,049\alpha/\beta]. \quad (8')$$

Аналитическое выражение $\rho_1(t)$ для импульса (6) имеет вид

$$\begin{aligned} \rho_1(t) = & (\gamma - \alpha) L_1(\alpha) \{ [1/(\gamma_1 - \alpha - \beta) - 1/(\gamma_1 - 2\alpha) + \delta L_2(\alpha) - (\delta + \alpha - \beta) L_2(\beta)] e^{-\gamma_1 t} + \\ & + e^{-2\alpha t}/(\gamma_1 - 2\alpha) - e^{-(\alpha+\beta)t}/(\gamma_1 - \alpha - \beta) \} - L_2(\alpha) \{ [(\gamma - \alpha) \delta L_1(\alpha) - \\ & - (\gamma - \beta) (\delta - \alpha + \beta)] \cos \Omega t - \Omega [\delta L_1(\alpha) - (\delta - \alpha + \beta) L_1(\beta)] \sin \Omega t \} e^{-(\gamma+\alpha)t} + (\alpha \leftrightarrow \beta); \end{aligned} \quad (9)$$

$$L_1(\alpha) = 1/[(\gamma - \alpha)^2 + \Omega^2], \quad L_2(\alpha) = 1/[(\gamma_1 - \gamma - \alpha)^2 + \Omega^2], \quad \delta = \gamma_1 - 2\gamma.$$

Из (9) видно, что импульс-отклик индуцированной флуоресценции $\sim \rho_1(t)$ содержит гладкую (первые фигурные скобки) и осциллирующую части. Последняя затухает со скоростью, определяемой константой распада поляризации γ и длительностью возбуждающего импульса. Наиболее наглядно данные составляющие отклика выявляются при $r \rightarrow \infty$, т. е. для экспоненциально-затухающего импульса возбуждения. В этом случае при отсутствии столкновений ($\gamma = \gamma_1/2$)

$$\rho_1(t) = \frac{1}{2} L_1(\alpha) [(e^{-\alpha t} - e^{-\gamma_1 t/2})^2 + 4e^{-(\gamma_1+2\alpha)t/2} \sin^2(\Omega t/2)], \quad (10)$$

и гладкая часть импульса флуоресценции пропорциональна $G^2(t)$ (6), где $\beta = \gamma_1/2$. При $\alpha \rightarrow \gamma_1/2$ амплитуда гладкой части убывает $\sim (\alpha - 2\gamma_1)^2$ до нуля, вследствие чего контраст осцилляций становится максимальным.

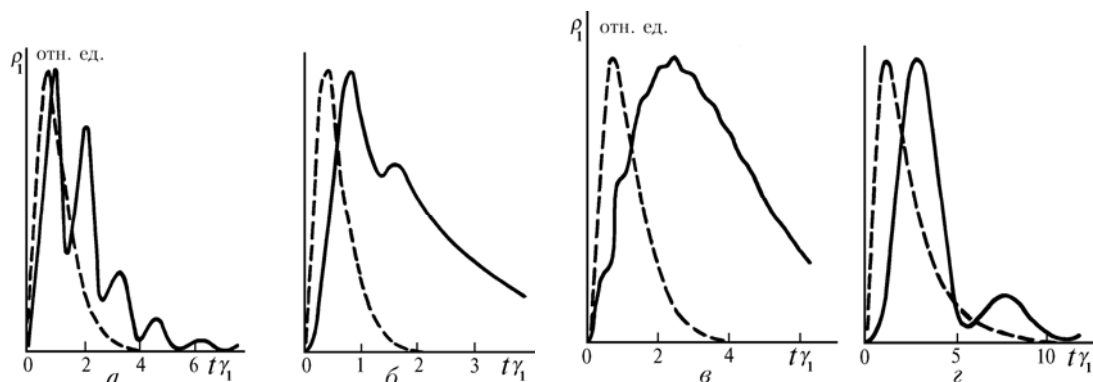


Рис. 1. Форма импульса-отклика резонансной флуоресценции, содержащего осцилляции и линейном режиме поглощения вследствие отстройки несущей частоты возбуждающего импульса от частоты перехода (сплошные линии): а — $\tau_2\gamma_1 = 1,2$; $\Omega/\gamma_1 = 10$; $\gamma/\gamma_1 = 0,5$; $r = 0,1$; б — $\tau_2\gamma_1 = 0,6$; $\Omega/\gamma_1 = 12$; $\gamma/\gamma_1 = 2$; $r = 0,1$; в — $\tau_2\gamma_1 = 1,3$; $\Omega/\gamma_1 = 24$; $\gamma/\gamma_1 = 2$; $r = 0,1$; г — $\tau_2\gamma_1 = 2,2$; $\Omega/\gamma_1 = 2,5$; $\gamma/\gamma_1 = 0,5$; $r = 9$. Штриховыми линиями представлен возбуждающий импульс $G^2(t)$ (6)

Примеры осцилляций в импульсе спонтанного испускания для различных значений параметров τ_2 , γ , γ_1 и r приведены на рис. 1 на основе расчетов по формуле (9). Из рис. 1 видно, что контраст осцилляций, определяемый как отношение разности между полусуммой значений $\rho_1(t)$ для двух соседних максимумов и значением ρ_1 в минимуме между ними к абсолютному максимуму заселенности, может быть достаточно большим, т.е. выделение осцилляций возможно на фоне довольно высоких шумов эксперимента.

Из (9), (10), равно как и из общих соображений, следует, что необходимым условием наблюдения осцилляций являются достаточно большие длительность импульса τ_2 и время затухания поляризации γ^{-1} сравнительно с периодом осцилляций $\tau_{\text{осц}} = 2\pi/\Omega$:

$$\tau_{\text{осц}} \ll \min(\tau_2, \gamma^{-1}). \quad (11)$$

Соотношение (11) очевидным образом ограничивает область существования осцилляций в импульсе-отклике со стороны малых длительностей импульса. Со стороны больших τ_2 также протекает ограничение на осцилляции, так как в этом случае осцилляции с наибольшей амплитудой наблюдаются на ограниченном интервале $0 < t < 1/\gamma$ и происходит их подавление за счет крутизны фронта и вследствие малости амплитуды отклика $\sim t^2$ при $t \ll \tau_2$ (см. рис. 1, *в*). Таким образом, область значений τ_2 , при которых осцилляции ощутимы, ограничена со стороны больших и малых времен и определяется параметрами γ , γ_1 и r .

Наиболее полное представление об областях существования значимых осцилляций в зависимости от длительности импульса τ_2 и отстройки частоты Ω дает рис. 2, где приведены расчетные изолинии равного числа осцилляций в отклике, контраст которых больше или равен 5%. Цифрами указано число осцилляций, равное количеству локальных минимумов $\rho_1(t)$, находящихся между максимумами, удовлетворяющими условию достаточного контраста.

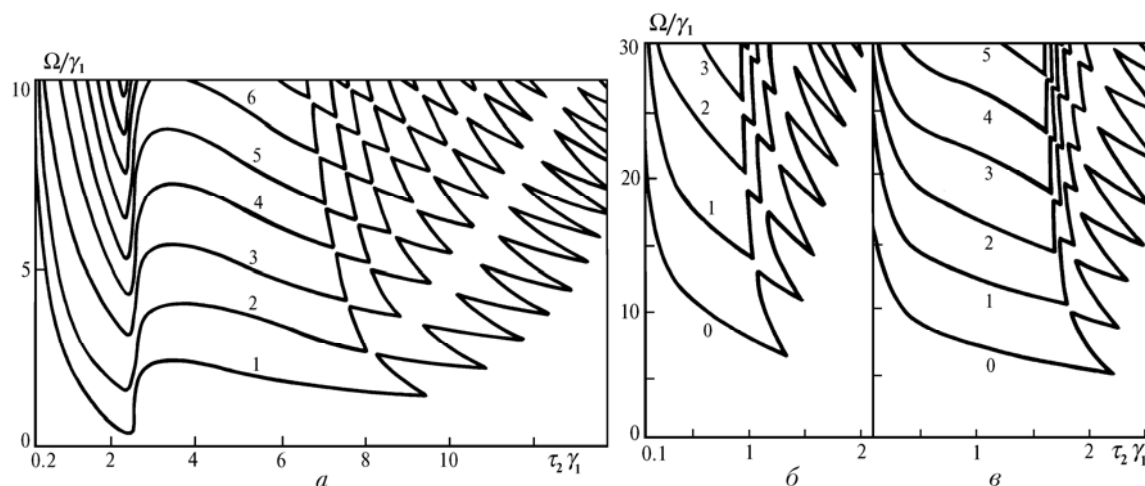


Рис. 2. Области существования осцилляций в зависимости от длительности возбуждающего импульса τ_2 и отстройки частоты Ω при различных значениях параметров γ и r : *a* — $\gamma/\gamma_1 = 0,5$; $r = 0,1$; *б* — $\gamma/\gamma_1 = 2$; $r = 0,1$; *в* — $\gamma/\gamma_1 = 2$; $r = 9$

В соответствии с приведенными выше общими соображениями следует, что ширина области существования по τ_2 прямо пропорциональна времени затухания поляризации $1/\gamma$ (ср. рис. 2, *a*, 2, *б*), а при равных γ она тем больше, чем круче передний и протяженный задний фронт импульса (рис. 2, *б* и 2, *в*). Периодическая «пилообразная» структура изолиний при больших τ_2 объясняется поочередным «наполнением» осцилляций на максимум гладкой части импульса, на переднем фронте которого происходит их подавление. Гладкие и регулярно расположенные изолинии при малых τ_2 соответствуют размещению осцилляций на заднем фронте, когда максимум первой осцилляции находится при больших значениях t , нежели максимум гладкой составляющей отклика. Изгибы кривых на рис. 2, *a* в области средних τ_2 связаны с зависимостью фазы осцилляций от Ω и формы импульса-отклика вблизи его максимума.

Расчеты для осцилляций с более высоким контрастом, аналогичные проведенным с целью построения рис. 2, показывают, что в целом вид и характер расположения изолиний остаются неизменными, а ширина области существования по τ_2 с увеличением контраста отслеживаемых осцилляций уменьшается незначительно. Более заметно разрежение изолиний по координате Ω , в особенности при малых τ_2 . Так, например, изменение контраста с 5 до 50% для случая, представленного на рис. 2, *a*, приводит к уменьшению числа принимаемых во внимание осцилляций от 9 до 6 при $\Omega = 10\gamma_1$ и $\tau_2 \sim 2/\gamma_1$ и к меньшим изменениям при $\tau_2 > 3/\gamma_1$.

В заключение отметим, что существенная зависимость специфической конфигурации областей существования осцилляций от отношения γ/γ_1 , формы и соотношения длительностей фронтов возбуждающего импульса создает предпосылки для тонкого экспериментального исследования этих характеристик, в особенности при низких давлениях газа, когда значения γ минимальны.

1. Летохов В. С. Нелинейные селективные фотопроцессы в атомах и молекулах. М.: Наука, 1983. 408 с.
2. Акулин В. М., Карлов Н. В. Интенсивные резонансные взаимодействия в квантовой электронике. М.: Наука, 1987. 312 с.
3. Многофотонная ионизация атомов/Под ред. Н.Г. Басова. М.: Наука, 1980. 175 с. (Тр. ФИАН. Т. 115).
4. Летохов В. С. Лазерная фотоионизационная спектроскопия. М.: Наука, 1987. 317 с.
5. Камалов В. Ф., Разживин А. П., Толеутов Б. Н. и др. //Квантовая электроника. 1987. Т. 14. № 6. С. 1303.
6. Парамонов Г. К., Савва В. А. //Квантовая электроника. 1985. Т. 12. № 1. С. 29–40.
7. Аллен Л., Эберли Дж. Оптический резонанс и двухуровневые атомы М.: Мир, 1978. 222 с.

8. Световое эхо и проблемы когерентной оптики /Под ред. В.А. Катулина. Куйбышев: Изд-во Куйбышевского госуниверситета, 1990. 164 с.
9. Делоне Н.Б., Крайнов В.П. Атом в сильном поле. М.: Атомиздат, 1978. 228 с.
10. Бутылкин В.С., Каплан А.Е., Хронополо Ю.Г., Якубович Е.И. Резонансные взаимодействия света с веществом. Гл. III. М.: Наука, 1977. 352 с.
11. Зон Б.А., Кацнельсон Б.Г. //Известия вузов. Радиофизика. 1973. Т. 16. Вып. 3. С. 375.

Институт оптики атмосферы СО РАН,
Томск

Поступила в редакцию
11 августа 1992 г.

V. P. Kochanov. Oscillations in a Pulse of Resonance Fluorescence Initiated by a Smooth Pulse of Nonsaturating Radiation.

A theoretical study of oscillations occurring in a pulse of a spontaneous emission initiated in a regime of linear absorption of a smooth bell shaped radiation pulse exciting a resonance atomic transition. The regions of the oscillations existence are found numerically for different durations of the excitation pulse and for different detunings of its radiation frequency from resonance with the atomic transition. An essential dependence of the size and shape of the regions on the rate of an induced dipole moment of an atom and on the ratio of leading and trailing edges durations of the excitation pulse is revealed.