

Влияние четырехфотонных взаимодействий на когерентное пленение населенности в Λ -системе

Б. А. Гришанин, В. Н. Задков, Д. Мешед[†]

*Физический Факультет и Международный Лазерный Центр
Московского Государственного Университета им. М. В. Ломоносова
Москва 119899, Россия*

*[†]Институт прикладной физики, Боннский университет,
D-53115 Бонн, Германия*

22 января 2003 г.

Аннотация

В результате марковского анализа Λ -системы, возбужденной двумя резонансными световыми полями, рассчитан спектр ее резонансной флуоресценции. В предельном случае сильного поля получены аналитические формулы как в рамках приближения вращающихся волн так и за его пределами. Показано, что при когерентном пленении населенности в системе ее резонансная флуоресценция не исчезает. Ее спектр состоит из двух триплетов, аналогичных триpletу в спектре резонансной флуоресценции двухуровневого атома, расположенных на частотах электронных переходов, и двух триплетов, расположенных на частотах четырехфотонных процессов с участием возбуждающих световых полей. Последние имеют фундаментальный характер и накладывают ограничения на нижний предел скорости дефазировки рамановского резонанса за счет вклада радиационного распада дипольных переходов в динамику основного состояния. Проанализировано влияние четырехфотонного механизма дефазировки на спектр поглощения Λ -системы, приводящее к существенному уменьшению глубины провала в спектре поглощения, вплоть до его исчезновения при возрастании интенсивности лазерного поля.

1 Введение

Взаимодействие электромагнитного поля с атомом является одной из наиболее фундаментальных проблем квантовой оптики. Известно, что многоуровневые атомы проявляют здесь существенно более широкий спектр эффектов, чем двухуровневые атомы (ДА), за счет индуцированной полем когерентности между атомными состояниями и квантовой интерференции. Трехуровневые системы, реализуемые в Λ -, Ξ - и V -конфигурациях, играют важную роль для изучения этих эффектов, являясь промежуточной по сложности системой между ДА и многоуровневыми атомами. В них наблюдается целый ряд новых эффектов, из которых когерентное пленение населенности (КПН) является одним из самых интригующих явлений, интенсивно исследовавшихся экспериментально

и теоретически (см. обзоры [1, 2] и список ссылок в них). Эффект КПН наиболее ярко проявляется в трехуровневой системе с двумя близкими долгоживущими уровнями и третьим удаленным от них уровнем (Λ - или V -система), возбужденной двумя непрерывными лазерными полями, так что удаленный уровень оптически “связан” с двумя другими уровнями. Настройка возбуждающих систему полей в резонанс с ее дипольными переходами приводит к пленению населенности системы в когерентной суперпозиции двух близкорасположенных уровней. В спектрах рамановского поглощения этот эффект проявляется в виде очень узкого провала на фоне линии поглощения, а в спектрах резонансной флуоресценции он наблюдается как отсутствие эмиссии, что и дало название “темный (или КПН-) резонанс”.

В настоящей статье мы исследуем вопрос как влияют четырехфотонные взаимодействия на эффект КПН в Λ -системе, возбужденной двумя непрерывными лазерными полями, в частности, насколько “темным” является КПН-резонанс в спектре резонансной флуоресценции и насколько глубоким является провал в спектре рамановского поглощения. Для интенсивности резонансной флуоресценции Λ -системы при КПН существует грубая оценка в приближении вращающихся волн (ПВВ) [3], которая дает нулевое значение по отношению к интенсивности флуоресценции ДА. Тот же результат наблюдается на рис. 5(с) в [4], на котором приведен рассчитанный спектр флуоресценции Λ -системы. Отсюда можно сделать вывод, что Λ -система при КПН не излучает и темная линия в спектре ее резонансной флуоресценции отсутствует полностью.

Наши вычисления, приведенные в настоящей статье в асимптотике сильного поля, показывают, однако, что при когерентном пленении населенности в системе ее резонансная флуоресценция не исчезает. Ее спектр состоит из двух триплетов, аналогичных триpletу в спектре резонансной флуоресценции ДА, расположенных на частотах электронных переходов, и двух триплетов, расположенных на частотах четырехфотонных процессов с участием возбуждающих световых полей. Последние имеют фундаментальный характер и накладывают ограничения на нижний предел скорости дефазировки рамановского резонанса за счет вклада радиационного распада дипольных переходов в динамику основного состояния. Проанализировано влияние четырехфотонного механизма дефазировки на спектр поглощения Λ -системы, приводящее к существенному уменьшению глубины резонанса, вплоть до его исчезновения, при возрастании интенсивности лазерного поля.

Настоящая статья организована следующим образом. Секция 2 посвящена описанию структуры полного лиувиллиана атома, взаимодействующего с полем лазерного излучения. Проанализирована специфика возбуждения ДА и Λ -системы. В секции 3 приведен расчет спектра резонансной флуоресценции Λ -системы в рамках ПВВ и за его пределами. Влияние четырехфотонных взаимодействий с участием возбуждающих световых полей на КПН и их роль в формировании резонанса поглощения и дисперсии Λ -системы анализируются в секциях 4 и 5, соответственно. Большинство объемных математических вычислений вынесено в приложения А, В и С. В заключении обсуждается эксперимент для регистрации рассчитанной структуры спектра резонансной флуоресценции Λ -системы.

2 Лиувиллиан атома за пределами ПВВ. Динамические преобразования, используемые для вычисления спектра флуоресценции

Полный лиувиллиан атома, описывающий в марковской теории изменение атомных переменных согласно уравнению $d\hat{A}/dt = \mathcal{L}(t)\hat{A}$, имеет вид

$$\mathcal{L}(t) = \mathcal{L}_0 + \mathcal{L}_\delta + \mathcal{L}_r + \mathcal{L}_L(t). \quad (1)$$

Здесь \mathcal{L}_0 — невозмущенный лиувиллиан $(i/\hbar) [\mathcal{H}_0, \odot]$, включающий согласно (27) свободную прецессию атома с лазерными частотами (символ \odot обозначает место для подстановки преобразуемого оператора), \mathcal{L}_r и \mathcal{L}_δ определяют динамику атома, соответственно, за счет релаксации и ненулевой отстройки частот возбуждающих лазерных полей от резонансных частот переходов в атоме (резонансное возбуждение учтено в \mathcal{L}_0) а $\mathcal{L}_L(t)$ описывает лазерное возбуждение.

В рамках представления взаимодействия преобразование $S(0, t)$, соответствующее лиувиллиану (1), принимает вид

$$S(0, t) = S_{\text{RWA}}(0, t)\tilde{S}_0(0, t)e^{\mathcal{L}_0 t}, \quad (2)$$

где

$$S_{\text{RWA}}(0, t) = \exp(\mathcal{L}_{\text{RWA}} t), \quad \mathcal{L}_{\text{RWA}} = \mathcal{L}_\delta + \mathcal{L}_r + \mathcal{L}_p \quad (3)$$

определяют динамику системы в рамках ПВВ,

$$\tilde{S}_0(0, t) = \text{T exp} \left[\int_0^t \delta\mathcal{L}_p(\tau) d\tau \right] \quad (4)$$

— эволюционный супероператор, описывающий динамику системы за счет вклада нерезонансной компоненты возбуждения, и

$$\delta\mathcal{L}_p(t) = e^{\mathcal{L}_0 t} \mathcal{L}_L(t) e^{-\mathcal{L}_0 t} - \mathcal{L}_p \quad (5)$$

есть отклонение от среднего значения \mathcal{L}_p лиувиллиана, описывающего лазерное возбуждение [5]. Символ T, используемый в (4), обозначает временное упорядочение супероператоров, принятое в квантовой механике.

$\delta\mathcal{L}_p(\tau)$ в (5) осциллирует на частотах возбуждающих лазерных полей и их комбинациях. Мы можем рассматривать это отклонение, следовательно, как универсально малое возмущение по отношению к вкладу резонансного возбуждения для амплитуд возбуждающих полей, меньших, чем амплитуда внутриатомного поля. В первом порядке приближения по этому параметру эволюционный супероператор имеет вид:

$$S(0, t) = S(0, t)_{\text{RWA}} \left[1 + \int_0^t \delta\mathcal{L}_p(\tau) d\tau \right] e^{\mathcal{L}_0 t}. \quad (6)$$

Отметим, что это приближение справедливо при условии, что значение интеграла имеет порядок меньше единицы.

Рассмотрим теперь специфику возбуждения ДА и Λ -системы.

2.1 Возбуждение двухуровневого атома

Для ДА, возбужденного лазерным полем $E_L \cos(\omega_L t)$, уравнение (5) принимает вид

$$\delta\mathcal{L}_p(\tau) = i\frac{\Omega_0}{2} [\hat{\sigma}^+ e^{-2i\omega_L \tau} + \hat{\sigma}^- e^{2i\omega_L \tau}, \odot], \quad (7)$$

где Ω_0 — частота Раби и $\hat{\sigma}^\pm$ — стандартные матрицы Паули. Применяя (7) к комплексной амплитуде поляризации $\hat{\sigma}^+$ и используя (6), мы получаем, что $S(t)\hat{\sigma}^+$ определяет структуру триплета (из-за $S(t)_{\text{RWA}}$) в спектре резонансной флуоресценции ДА на частоте $3\omega_L$ [5], аналогичную известному триpletу на частоте лазерного возбуждения [6, 7]. Интегрируя по τ в (6) мы можем легко показать, что отношение соответствующих амплитуд спектральных компонент на частотах третьей гармоники и лазерного излучения пропорционально малой величине $\Omega_0/(2\omega_L)$.

2.2 Возбуждение Λ -системы

Рассмотрим Λ -систему, состоящую из трех электронных уровней с частотами переходов между ними $\omega_{12} \ll \omega_{13}, \omega_{23}$ (рис. 1). Два когерентных поля $E \cos(\omega_L t) + E' \cos(\omega'_L t)$ действуют на переходы $1 \leftrightarrow 3$ и $2 \leftrightarrow 3$, соответственно. Эти поля взаимодействуют с полным дипольным моментом системы, определяемым оператором $d_{13}\hat{\sigma}_{13} + d_{23}\hat{\sigma}_{23}$, где $\hat{\sigma}_{13,23}$ — матрицы Паули $\hat{\sigma}_1$ для соответствующих атомных переходов. В результате индуцированный дипольный момент системы осциллирует с частотами $\pm\omega_L$ и $\pm\omega'_L$.

В отличие от ДА, когда оба возбуждающих поля взаимодействуют с одним и тем же атомным переходом, в случае возбуждения Λ -системы каждое поле взаимодействует с двумя переходами. Поэтому лиувиллиан, соответствующий бигармоническому лазерному возбуждению с частотной расстройкой $\Delta = \omega'_L - \omega_L$, принимает согласно (37) вид

$$\delta\mathcal{L}_p(\tau) = \frac{i\hbar g_\Lambda}{2} [(\hat{\tau} e^{i\Delta t} + \hat{\tau}^+ e^{-i\Delta t}), \odot], \quad (8)$$

где $g_\Lambda = \sqrt{g^2 + g'^2}$, $g = d_{13}E'$, $g' = d_{23}E$ и оператор $\hat{\tau}$ определяется как

$$\hat{\tau} = g_\Lambda^{-1} (g\hat{\sigma}_{13}^+ + g'\hat{\sigma}_{23}^-). \quad (9)$$

При выводе (8) мы пренебрегли членами, содержащими суммы с высшими частотами.

Уравнение (8) определяет, очевидно, дополнительные спектральные компоненты на частотах $\omega_L \pm \Delta$ и $\omega'_L \pm \Delta$, из которых только компоненты на частотах $\omega_L - \Delta$ и $\omega'_L + \Delta$ являются новыми. Они соответствуют четырехфотонным процессам и должны проявляться для симметричной Λ -системы как зеркально-отраженные виртуальные уровни подсистемы нижних уровней (рис. 2) из-за модуляции переходов $1 \leftrightarrow 3$ и $2 \leftrightarrow 3$ собственной колебательной частотой $\Delta \approx \omega_{12}$ подсистемы нижних уровней. Известно, что четырехфотонное смешение частот приводит к генерации когерентного сигнала на стоксовой и анти-стоксовой частотах (КАРС и КСРС) [8]. Наши дальнейшие расчеты показывают, однако, что эти нелинейные резонансы сопровождаются также боковыми полосами за счет процессов некогерентного рассеяния.

Приведенный выше анализ показывает, что существенное отличие между возбуждением ДА (см. (7)) и Λ -системы (см. (8)) заключается в том, что в случае Λ -системы возбуждение существенно определяется бигармонической частотной расстройкой Δ . В

экспериментах эта расстройка обычно значительно меньше по величине, чем частоты возбуждающих систему лазерных полей. Это приводит к тому, что интенсивность дополнительных компонент в спектре флуоресценции (тонкая структура), определяемая экспоненциальными множителями в (7) и (8), для Λ -системы значительно больше, чем для ДА.

3 Расчет спектра флуоресценции Λ -системы

Известно, что спектральная плотность излучения возбужденного атома (спектр резонансной флуоресценции) определяется нормально упорядоченной двухвременной корреляционной функцией излученного атомом света [9, 10]. Предполагая марковский характер атомных флуктуаций, т. е. их независимость друг от друга в моменты времени t и $t + \tau$, мы можем записать корреляционную функцию, описывающую флуоресценцию атома, в виде

$$\mathcal{K}(\tau) = \langle \hat{\rho}_0 S(0, t) | \hat{\sigma}^-(t) [S(t, t + \tau) \hat{\sigma}^+(t + \tau)] \rangle, \quad (10)$$

где $\hat{\sigma}^\pm(t)$ — положительно/отрицательно частотные операторы Гейзенберга атомных переходов, в которых временная зависимость присутствует только в форме высокочастотных осцилляций на оптических частотах. $S(0, t)$, $S(t, t + \tau)$ описывают релаксацию и взаимодействие атома с возбуждающими лазерными полями в интервалы времени $(0, t)$ и $(t, t + \tau)$, соответственно, а $\hat{\rho}_0 S(0, t)$ представляет матрицу плотности $\hat{\rho}(t)$ в момент времени t . Из (3) следует, что супероператоры $S(0, t)$ и $S(t, t + \tau)$ являются в рамках ПВВ простыми экспонентами типа $\exp[\mathcal{L}_{\text{RWA}}(t)]$.

Член $\hat{\sigma}^-(t) [S(t, t + \tau) \hat{\sigma}^+(t + \tau)]$ в (10) является просто произведением двух операторов $\hat{\sigma}^-(t)$ и $\hat{\sigma}^+(t + \tau)$, усредненных по флуктуациям в интервале времени $(t, t + \tau)$. Это усреднение выполняется с помощью преобразования $S(t, t + \tau)$, которое определяет функцию условного атомного квантового распределения вероятностей в момент времени $t + \tau$ по отношению к моменту t . Спектр излучения атома может быть вычислен затем как Фурье-преобразование корреляционной функции (10).

В стационарном случае матрица плотности в векторном представлении является просто нулевым вектором $\langle 0 |$ матрицы эволюционного супероператора \mathcal{L}_{RWA} . Тогда мы можем получить стационарную корреляционную функцию из (10) путем ее усреднения по временным осцилляциям. Это усреднение приводит к замене билинейной комбинации полных операторов $\hat{\sigma}^\pm(t)$ двумя комбинациями

$$\hat{\sigma}^-(t) \times \hat{\sigma}^+(t + \tau) \implies \hat{\sigma}_{13}^- \times \hat{\sigma}_{13}^+(\tau) \oplus \hat{\sigma}_{23}^- \times \hat{\sigma}_{23}^+(\tau).$$

Аналогично,

$$\mathcal{K}(\tau) \implies \mathcal{K}_1(\tau) + \mathcal{K}_2(\tau).$$

При вычислении спектра резонансной флуоресценции атома в рамках ПВВ корреляционные функции $\mathcal{K}_{1,2}(\tau)$ соответствуют частотам $\omega_{13} \approx \omega_L$ и $\omega_{23} \approx \omega'_L$, а при вычислении тонкой структуры спектра за пределами применимости ПВВ они соответствуют частотам $\omega_L - \Delta = 2\omega_L - \omega'_L$ и $\omega'_L + \Delta = 2\omega'_L - \omega_L$, соответственно (см. раздел 2.2).

Описывая динамику Λ -системы с помощью ПВВ-лиувиллиана и разлагая его по собственным проекторам, мы получаем следующее относительно простое выражение:

$$\mathcal{K}(\tau) = \sum_{k=0}^8 \left[\langle 0 | \hat{\sigma}_{13}^- \cdot |k\rangle \rangle \langle k | \hat{\sigma}_{13}^+ \rangle e^{(\lambda_k - i\omega_L)\tau} + \langle 0 | \hat{\sigma}_{23}^- \cdot |k\rangle \rangle \langle k | \hat{\sigma}_{23}^+ \rangle e^{(\lambda_k - i\omega'_L)\tau} \right], \quad (11)$$

где символ “ \cdot ” обозначает, что операнды перемножаются по правилам перемножения операторов и результат представляется в виде кет-вектора; λ_k , $|k\rangle$ и $\langle k|$ являются собственными значениями матрицы и собственными векторами \mathcal{L}_{RWA} .

Используя (11) вместе с Приложением В, мы можем получить выражение для корреляционной функции, описывающей структуру спектра резонансной флуоресценции атома за пределами применимости ПВВ, в виде

$$\mathcal{K}(\tau) = \frac{g_\Lambda^2}{4\omega_{12}^2} \sum_{k=0}^8 \langle 0 | \hat{\sigma}_{12}^- \cdot | k \rangle \langle k | \hat{\sigma}_{12}^+ \rangle \left[e^{-i(\omega_L - \Delta)\tau} + e^{-i(\omega_L + \Delta)\tau} \right] e^{\lambda_k \tau}, \quad (12)$$

где $\hat{\sigma}_{12}^\pm$ — комплексные сопряженные амплитуды подсистемы нижних уровней, модулирующие дипольный момент перехода. Эта модуляция приводит к появлению новых спектральных компонент в спектре флуоресценции.

Напомним, что (12) описывает только основную структуру спектра флуоресценции, определяемую параметром g_Λ/ω_{12} , который мы считаем малым. Мы пренебрегли при этом вкладом более высокого порядка, который приводит к ненулевому вкладу в когерентную компоненту ПВВ-отклика, равную нулю без учета данной поправки в сильном поле в первом порядке приближения по параметру Γ/g_Λ для расстройок δ и $\delta_R \approx 0$ (по аналогии с ДА [7]).

3.1 Спектр флуоресценции в приближении вращающихся волн

Спектр флуоресценции, определяемый (11), представляет сумму лоренцовских спектральных линий, полные спектральные мощности которых пропорциональны коэффициенту перед соответствующей экспонентой в (11), а их ширина и частотный сдвиг определяются вещественной и мнимой частями собственных значений λ_k . Спектр флуоресценции может быть рассчитан в общем случае численно. Однако в асимптотике сильного поля, как будет показано ниже (и продемонстрировано в [4] для частного случая), можно получить и аналитическое решение.

Рассмотрим для простоты Λ -систему, возбужденную двумя сильными лазерными полями равной интенсивности. В этом случае мы можем усреднить релаксацию системы по нутациям Раби, а соответствующий оператору $\mathcal{L}_p = (i/\hbar)[\hat{H}_p, \odot]$ лазеро-индуцированной прецессии гамильтониан принимает вид:

$$\hat{H}_p = \hbar \frac{g}{2} \hat{\sigma} = \hbar \frac{g_\Lambda}{2\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 0 & 1 & 1 \\ 1 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \end{pmatrix}.$$

Этому гамильтониану соответствуют квазиэнергетические состояния с энергиями, смещенными по отношению к собственным значениям гамильтониана \hat{H}_p , равным $\{0, \pm g_\Lambda/2\}$ [11] (для ДА собственные значения гамильтониана равны $\{\pm g_{\text{TLA}}/2\}$). Временная динамика этих смещенных квазиэнергетических состояний вызывает осцилляции ожидаемых значений физических переменных на двух разных частотах g_Λ и $g_\Lambda/2$. Физическое значение этих нутаций в терминах квазиэнергетических уровней проиллюстрировано на рис. 3.

Нутации Раби между квазиэнергетическими уровнями описываются лиувиллианом, который в операторном базисе $\{\hat{n}_3, \hat{n}_1, \hat{n}_2, \hat{\sigma}_{12}^c, \hat{\sigma}_{12}^s, \hat{\sigma}_{13}^c, \hat{\sigma}_{13}^s, \hat{\sigma}_{23}^c, \hat{\sigma}_{23}^s\}$ (индексы с и s обо-

значают cos- и sin-компоненты, соответственно) принимает вид

$$L_p = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & g_\Lambda/2 & 0 & g_\Lambda/2 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -g_\Lambda/2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -g_\Lambda/2 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -g_\Lambda/(2\sqrt{2}) & 0 & -g_\Lambda/(2\sqrt{2}) \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & g_\Lambda/(2\sqrt{2}) & 0 & -g_\Lambda/(2\sqrt{2}) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -g_\Lambda/(2\sqrt{2}) & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -g_\Lambda/2 & g_\Lambda/2 & 0 & g_\Lambda/(2\sqrt{2}) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & g_\Lambda/(2\sqrt{2}) & 0 & 0 & 0 & 0 \\ -g_\Lambda/2 & 0 & g_\Lambda/2 & g_\Lambda/(2\sqrt{2}) & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (13)$$

Его собственные значения λ_k ($k = 0, \dots, 8$) равны $0, 0, 0, -ig_\Lambda/2, -ig_\Lambda/2, ig_\Lambda/2, ig_\Lambda/2, -ig_\Lambda, ig_\Lambda$, а соответствующий набор собственных векторов определяется как

$$\{\psi_k\} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \sqrt{1/2} & 0 & \sqrt{1/2} & 0 \\ 0 & -1/2 & -1/2 & \sqrt{1/2} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \sqrt{1/2} & 2^{-3/2} & 2^{-3/2} & 1/2 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & i/2 & -i/2 & 0 & 0 & 0 & -1/2 & 0 & 1/2 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \sqrt{1/2} & -i/2 & 0 & i/2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \sqrt{1/2} & i/2 & 0 & -i/2 & 0 \\ 0 & -i/2 & i/2 & 0 & 0 & 0 & -1/2 & 0 & 1/2 \\ 1/2 & -1/4 & -1/4 & -2^{-3/2} & 0 & 0 & -i/2 & 0 & -i/2 \\ 1/2 & -1/4 & -1/4 & -2^{-3/2} & 0 & 0 & i/2 & 0 & i/2 \end{pmatrix}.$$

Обсудим теперь физическое значение динамических переменных, соответствующих собственным векторам ψ_k .

Собственный вектор ψ_0 описывает стационарное возбуждение системы двумя лазерными полями равной интенсивности, действующими на переходы $1 \leftrightarrow 3$ и $2 \leftrightarrow 3$, соответственно. Собственные векторы ψ_1 и ψ_2 описывают двухмерное подпространство стационарного возбуждения — комбинации поляризации основного состояния и населенностей всех трех уровней. Собственные векторы ψ_3 и ψ_6 описывают возбуждения, являющиеся комбинацией населенностей подсистемы нижних уровней и независимой комбинацией $1 \leftrightarrow 3 \oplus 2 \leftrightarrow 3$ поляризаций; они осциллируют с половинной частотой Раби $g_\Lambda/2$. Собственные векторы ψ_4 и ψ_5 описывают возбуждения, являющиеся комбинацией трех поляризаций — $1 \leftrightarrow 2$ и независимой комбинации $1 \leftrightarrow 3 \oplus 2 \leftrightarrow 3$ —, которые также осциллируют с частотой $g_\Lambda/2$. Два последних собственных вектора ψ_7 и ψ_8 описывают возбуждение связанного состояния вместе с населенностями всех трех уровней и поляризацией основного состояния, осциллирующих с частотой g_Λ . Таким образом нутации Раби собственных возбуждений системы для комбинаций несвязанных уровней происходят на частоте $g_\Lambda/2$, в то время как связанные состояния осциллируют с частотой g_Λ (см. (28)).

Используя (13) для L_p , описывающего нутации, мы можем усреднить лиувиллиан $\mathcal{L}_\delta + \mathcal{L}_\tau$ в (1) по нутациям и записать его в виде суммы 3×3 , 2×2 , 2×2 и двух 1×1 матриц (последние две являются диагональными элементами). В результате мы можем получить упрощенное выражение для последних трех членов в (1), описывающих полную динамику системы в представлении взаимодействия, в виде

$$\mathcal{L}_{\text{RWA}} = \begin{pmatrix} -(\Gamma_{13} + \Gamma_{23})/2 & 0 & 0 \\ 0 & -\Gamma_{12}/2 & -(\gamma + \gamma' + \Gamma_{12})/2\sqrt{2} \\ 0 & -\Gamma_{12}/2\sqrt{2} & -(\gamma + \gamma' + \Gamma_{12})/4 \end{pmatrix}$$

$$\begin{aligned}
& \oplus \left(\begin{array}{cc} -(\gamma_{12} + w)/2 - \Gamma_{13}/4 - \Gamma_{23}/4 - ig_{\Lambda}/2 & -i\delta_s/2 \\ -i\delta_s/2 & -\Gamma_{12}/2 - \Gamma_{13}/4 - \Gamma_{23}/4 - ig_{\Lambda}/2 \end{array} \right) \\
& \oplus \left(\begin{array}{cc} -\Gamma_{12}/2 - \Gamma_{13}/4 - \Gamma_{23}/4 + ig_{\Lambda}/2 & i\delta_s/2 \\ i\delta_s/2 & -(\gamma_{12} + w)/2 - \Gamma_{13}/4 - \Gamma_{23}/4 + ig_{\Lambda}/2 \end{array} \right) \\
& \oplus (-3\gamma/8 - 3\gamma'/8 - \Gamma_{12}/8 - \Gamma_{13}/4 - \Gamma_{23}/4 - ig_{\Lambda}) \\
& \oplus (-3\gamma/8 - 3\gamma'/8 - \Gamma_{12}/8 - \Gamma_{13}/4 - \Gamma_{23}/4 + ig_{\Lambda}),
\end{aligned}$$

где суммарная отстройка $\delta_s = 2\delta + \delta_R = \omega_L + \omega'_L - \omega_{13} - \omega_{23}$. Соответствующие собственные значения определяются как

$$\{\lambda_k\} = \left\{ \begin{array}{c} 0 \\ -(\gamma + \gamma' + 3\Gamma_{12})/4 \\ -(\Gamma_{13} + \Gamma_{23})/2 \\ \mu_1 \\ \mu_2 \\ \mu_1^* \\ \mu_2^* \\ (-3\gamma - 3\gamma' - \Gamma_{12} - 2\Gamma_{13} - 2\Gamma_{23} - 8ig_{\Lambda})/8 \\ (-3\gamma - 3\gamma' - \Gamma_{12} - 2\Gamma_{13} - 2\Gamma_{23} + 8ig_{\Lambda})/8 \end{array} \right\},$$

где

$$\mu_{1,2} = [-\gamma_{12} - w - \Gamma_{12} \pm i(4\delta_s^2 - (\gamma_{12} + w + \Gamma_{12})^2)^{1/2} - \Gamma_{13} - \Gamma_{23} - 2ig_{\Lambda}]/4.$$

Здесь γ_{12} и w — скорости релаксации и накачки подсистемы нижних уровней, Γ_{12} — скорость дефазировки в этой подсистеме, γ и γ' — скорости релаксации с возбужденного состояния и Γ_{13} , Γ_{23} — соответствующие скорости дефазировки.

Рассмотрим сейчас детально собственные значения λ_k .

Заметим, что благодаря несамоспряженности релаксационного оператора каждое собственное значение соответствует двум собственным векторам — один из них описывает операторы, действующие на физические переменные, а другой описывает матрицы плотности. Собственное значение $\lambda_0 = 0$ соответствует стационарному состоянию $\hat{\rho}_{st} \rightarrow \langle 0|$ и оператору $\hat{I} \rightarrow |0\rangle$, который не имеет динамического значения. Это собственное значение определяет в спектре флуоресценции когерентную линию. Собственные значения $\lambda_{1,2}$ описывают неосциллирующую динамику системы и определяют релеевское рассеяние возбуждающих систему полей. Четыре собственных значения $\lambda_{3,4,5,6}$ определяют осцилляции с половинной частотой Раби $g_{\Lambda}/2 = g/\sqrt{2}$ и описывают вклад в спектр флуоресценции за счет индуцированных полем резонансов. Два последних собственных значения $\lambda_{7,8}$ определяют осцилляции с частотой Раби g_{Λ} и описывают обычные нутации $1 \leftrightarrow 3$ и $2 \leftrightarrow 3$ в пределе слабого поля.

Предыдущий анализ показывает, что в сильном поле в собственных колебаниях системы проявляется не рамановская отстройка δ_R , а только суммарная отстройка $\delta_s = 2\delta + \delta_R$. При этом для $\delta = 0$ релаксация в системе нижних уровней не дает вклада в осцилляции с половинной частотой Раби:

$$\mu_{1,2} = -\Gamma_{13}/4 - \Gamma_{23}/4 - ig_{\Lambda}/2.$$

Этот эффект, в принципе, может быть использован для изучения вклада системы нижних уровней в спектр флуоресценции в эксперименте, в котором спектры измеряются в

зависимости от отстройки δ при различных интенсивностях лазерных полей. Измеряемая ширина спектральных компонент, расположенных на половинной частоте Раби, при этом определяется напрямую скоростью релаксации в системе нижних уровней.

Для случая точного резонанса $\delta, \delta_R = 0$ мы можем получить следующее аналитическое выражение для спектра флуоресценции в ПВВ:

$$F_{\text{RWA}}(\omega) = \gamma \sqrt{\frac{\tilde{\Gamma}_{12}}{8\tilde{\gamma} + 12\tilde{\Gamma}_{12}}} \left[\frac{1}{\pi} \frac{1}{\tilde{\omega}^2 + 1} + \sum_{\pm} \frac{1}{\pi} \frac{(4 + 6\tilde{\gamma} + \tilde{\Gamma}_{12})/16}{(\tilde{\omega} \pm g_{\Lambda})^2 + (4 + 6\tilde{\gamma} + \tilde{\Gamma}_{12})^2/64} \right], \quad (14)$$

где мы пренебрегли для простоты выражения скоростью релаксации γ_{12} и знак тильды означает, что соответствующие переменные нормированы на $\Gamma = \Gamma_{13} = \Gamma_{23}$. Общий коэффициент в (14) определяет благодаря первому члену в квадратных скобках спектральную интенсивность лоренцовской линии. Спектр флуоресценции в ПВВ, определяемый (14), приведен на рис. 4. Он состоит из двух идентичных триплетов, расположенных на частотах передов ω_{13} и ω_{23} .

Отметим, что в вычисленном выше спектре флуоресценции в ПВВ отсутствует когерентная линия. Спектр напоминает простую комбинацию двух спектров флуоресценции от двух независимых двухуровневых систем $1 \leftrightarrow 3$ и $2 \leftrightarrow 3$, возбужденных лазерными полями с частотами ω_L и ω'_L , соответственно. Существенное отличие по сравнению со спектрами от двух независимых двухуровневых систем, однако, заключается в том, что в случае Λ -системы общий коэффициент в (14), определяющий интенсивность спектральных компонент, отличается от соответствующего коэффициента для случая ДА, просто пропорционального γ . При КПН этот коэффициент для Λ -системы и, следовательно, интенсивность спектральных компонент уменьшаются приблизительно на величину $(\Gamma_{12}/\gamma)^{1/2}$, являющуюся малым параметром. Для атома цезия [12], например, он $\approx 4 \times 10^{-2}$, а для натрия [2] он может быть оценен как $\approx 7 \times 10^{-2}$ с помощью параметров в [13].

3.2 Тонкая структура спектра флуоресценции

Рассмотрим для простоты опять случай точного резонанса. Используя уравнения раздела 3.1 вместе с (12), мы получаем следующие выражения для коэффициентов c_k перед экспоненциальными множителями:

$$\begin{aligned} c_0 &= \frac{\gamma^2/\Gamma_{12}^2}{(3 + 2\gamma/\Gamma_{12})^{3/2}}, & c_1 &= \frac{9}{8} \frac{1 + 2\gamma/\Gamma_{12}}{(3 + 2\gamma/\Gamma_{12})^{3/2}}, \\ c_{2,3,5} &= 0, \\ c_{4,6} &= \frac{1}{4} \frac{1 + \gamma/\Gamma_{12}}{(3 + 2\gamma/\Gamma_{12})^{1/2}}, & c_{7,8} &= \frac{1}{16} \frac{1}{(3 + 2\gamma/\Gamma_{12})^{1/2}}, \end{aligned} \quad (15)$$

Помноженные на общий множитель $\gamma g_{\Lambda}^2/(4\omega_{12}^2)$, эти коэффициенты определяют интенсивность компонент тонкой структуры спектра флуоресценции (12).

Полный спектр флуоресценции Λ -системы, включающий как структуру в ПВВ так и рассчитанную выше тонкую структуру, приведен на рис. 5. Из (15) следует, что для типично больших значений отношения γ/Γ_{12} только коэффициенты c_0 и $c_4 = c_6$ пропорциональны большим значениям $\sim (\gamma/\Gamma_{12})^{1/2}$. В результате в каждой из двух тонких структур спектра флуоресценции проявляются только три линии (рис. 5). Одна из них

является когерентной, с интенсивностью, пропорциональной c_0 , а две другие — уширенными линиями с интенсивностью, пропорциональной c_4 , смещенными влево и вправо по отношению к когерентной линии на половинную частоту Раби $g_\Lambda/2$.

Отметим существенное различие между рассчитанными спектром флуоресценции Λ -системы в ПВВ и его тонкой структурой. При КПН в системе интенсивность спектральных компонент тонкой структуры спектра возрастает по величине на тот же фактор, на который уменьшается интенсивность компонент спектра флуоресценции в ПВВ.

4 Влияние четырехфотонных взаимодействий на когерентное пленение населенностей

Используя Приложение В мы можем легко рассчитать вклад в релаксацию основного состояния за счет релаксационных вкладов дипольных переходов. Природа процессов релаксации заключается во взаимодействии дипольных моментов переходов $1 \leftrightarrow 3$ и $2 \leftrightarrow 3$ с вакуумными флуктуациями электромагнитного поля. Эти взаимодействия описываются гамильтонианом

$$\hat{\mathcal{H}}_\xi = \frac{\hbar}{2} \left(\hat{\xi}_1^- \hat{\sigma}_{13}^+ + \hat{\xi}_2^- \hat{\sigma}_{23}^+ \right) + \text{h.c.}, \quad (16)$$

где $\hat{\xi}_1^- = \int \mathbf{d}_{13}(\mathbf{r}) \hat{\mathbf{E}}_0(\mathbf{r}) / \hbar$ и $\hat{\xi}_2^- = \int \mathbf{d}_{23}(\mathbf{r}) \hat{\mathbf{E}}_0(\mathbf{r}) / \hbar$ — компоненты с отрицательно-частотными амплитудами вакуумного электромагнитного поля $\hat{\mathbf{E}}_0(\mathbf{r})$, проинтегрированные по пространственному распределению $\mathbf{d}_{k3}(\mathbf{r})$ дипольных моментов ($k = 1, 2$).

Выделяя вклад в $\hat{\sigma}_{13}^+$ и $\hat{\sigma}_{23}^+$, обусловленный четырехфотонными взаимодействиями за пределами ПВВ, мы можем записать (16) в виде

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_\xi &= \hat{\mathcal{H}}_\xi^0 + \hat{\mathcal{H}}_\xi^{4\text{ph}}, \\ \hat{\mathcal{H}}_\xi^{4\text{ph}} &= \frac{\hbar}{2} \left(\hat{\xi}_1^- \delta S_0 \hat{\sigma}_{13}^+ + \hat{\xi}_2^- \delta S_0 \hat{\sigma}_{23}^+ \right) + \text{h.c.}, \end{aligned}$$

где $\hat{\mathcal{H}}_\xi^0$ определяет стандартное взаимодействие, $\hat{\mathcal{H}}_\xi^{4\text{ph}}$ описывает дополнительный вклад за счет четырехфотонных взаимодействий и δS_0 — четырехфотонный вклад в динамическое преобразование Λ -системы. Используя заключительные формулы Приложения В для преобразованных операторов $\hat{\sigma}_{13}^+$ и $\hat{\sigma}_{23}^+$, мы получаем следующую формулу для четырехфотонного вклада в гамильтониан:

$$\hat{\mathcal{H}}_\xi^{4\text{ph}} = \frac{g_\Lambda \hbar}{2\Delta} \left\{ \hat{\xi}_1^- [\hat{r}, \hat{\sigma}_{13}^+] e^{-i(\omega_L - \Delta)t} + \hat{\xi}_2^- [\hat{r}^+, \hat{\sigma}_{23}^+] e^{-i(\omega'_L + \Delta)t} \right\} + \text{h.c.} \quad (17)$$

Вычислив коммутаторы в (17), мы можем представить четырехфотонный вклад с помощью операторов переходов подсистемы нижних уровней как:

$$\hat{\mathcal{H}}_\xi^{4\text{ph}} = \frac{\hbar}{4\Delta} \left[g' \hat{\xi}_1^-(t) e^{-i(\omega_L - \Delta)t} \hat{\sigma}_{12}^- + g \hat{\xi}_2^-(t) e^{-i(\omega'_L + \Delta)t} \hat{\sigma}_{12}^+ \right] + \text{h.c.} \quad (18)$$

Отсюда следует, что электромагнитное поле вакуума взаимодействует с подсистемой нижних уровней посредством четырехфотонных процессов. Эффективность этого взаимодействия зависит от констант взаимодействия лазерных полей с дипольными переходами Λ -системы. Особенностью обсуждаемого взаимодействия является то, что излучение вакуумного кванта переходом $1 \leftrightarrow 3$ сопровождается поглощением кванта переходом $1 \leftrightarrow 2$, в то время как излучение вакуумного кванта переходом $2 \leftrightarrow 3$ сопровождается излучением кванта переходом $1 \leftrightarrow 2$. Сохранение энергии в этих процессах

осуществляется за счет четырехфотонного взаимодействия вакуумного поля с лазерными полями, что отражают экспоненциальные члены в (18).

Следуя [10], мы можем записать релаксационный оператор для подсистемы нижних уровней, который соответствует (18), в его обычной форме в рамках операторного базиса $\{\hat{n}_1, \hat{n}_2, \hat{\sigma}_1, \hat{\sigma}_2\}$:

$$\mathcal{L}_{12} = \begin{pmatrix} -\gamma_{12} & \gamma_{12} & 0 & 0 \\ w_{12} & -w_{12} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -(\gamma_{12} + w_{12})/2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -(\gamma_{12} + w_{12})/2 \end{pmatrix},$$

где γ_{12} — скорость релаксации подсистемы нижних уровней. Принимая во внимание, что член $g'\hat{\xi}_1^-\hat{\sigma}_{12}^-$ в (18) описывает релаксацию с уровня 1 на уровень 2 и член $g\hat{\xi}_2^-\hat{\sigma}_{12}^+$ описывает релаксацию в обратном направлении, мы получаем следующее выражение для релаксации за счет вклада четырехфотонных процессов:

$$\mathcal{L}_{12}^{4\text{ph}} = \frac{g_\Lambda^2}{4\Delta^2} \begin{pmatrix} -c^2\gamma_{13} & c^2\gamma_{13} & 0 & 0 \\ c'^2\gamma_{23} & -c'^2\gamma_{23} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -(c^2\gamma_{13} + c'^2\gamma_{23})/2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -(c^2\gamma_{13} + c'^2\gamma_{23})/2 \end{pmatrix}, \quad (19)$$

где $c = g/g_\Lambda$, $c' = g'/g_\Lambda$ и $c^2 + c'^2 = 1$.

Из (19) следует, что вклад четырехфотонных процессов в константу скорости релаксации подсистемы нижних уровней Γ_{12} определяется как

$$\Gamma_{12}^{4\text{ph}} = \frac{g_\Lambda^2}{8\Delta^2}(c'^2\gamma_{13} + c^2\gamma_{23}) \approx \frac{g_\Lambda^2}{4\Delta^2}\gamma_{13}/2.$$

Этот вклад приводит к фундаментальному ограничению снизу на величину Γ_{12} . Для атома Cs, например, этот вклад составляет при интенсивности лазерных полей ~ 1 В/см² величину $\Gamma_{12}^{4\text{ph}} \sim 10^{-3}\gamma_{13}/2 \approx 10^4$ с⁻¹.

5 Роль четырехфотонных взаимодействий в формировании резонанса поглощения и дисперсии

Наиболее простая экспериментальная возможность наблюдения темного резонанса состоит в измерении пропускания/дисперсии (в парах атомов) возбуждающих лазерных волн, независимая регистрация которых облегчена относительно большим значением разницы Δ соответствующих частот ω_L, ω'_L в окрестности резонанса: $\Delta \gg \Gamma$. Реальные и мнимые части соответствующих показателей преломления очевидным образом выражаются через операторы соответствующих дипольных переходов (в предположении справедливости макроскопического осреднения по объему) как:

$$n''_k = \frac{\hbar c g_k N_0}{I_k} \Im \langle |k\rangle \langle 3| \rangle, \quad (20)$$

$$n'_k - 1 = \frac{\hbar c g_k N_0}{I_k} \Re \langle |k\rangle \langle 3| \rangle, \quad (21)$$

где g_k, I_k — соответствующие частоты Раби и интенсивности полей, $k = 1$ соответствует частоте ω_L и $k = 2$ — частоте ω'_L (при этом $g_1 = g$ и $g_2 = g'$). Для вычисления (20), (21) в стационарном случае следует в ПВВ найти стационарную матрицу плотности, которая представляется соответствующим нулевым собственным вектором $\langle 0|$, определяемым из уравнения

$$\langle 0| \mathcal{L}_{\text{RWA}} = 0.$$

С учетом вклада четырехфотонных процессов в дефазировку резонанса релаксационный оператор в \mathcal{L}_{RWA} должен включать зависящую от поля добавку (19). При этом результаты усреднения в выражениях (20), (21) при естественном выборе базиса для векторного представления матриц плотности (см. приложение А.1) описываются просто соответствующими компонентами вектора $\langle 0|$.

Выполняя соответствующие аналитические расчеты и выражая концентрацию активных атомов через давление, получаем

$$n'_k - 1 = -0.0289p\lambda^3 \frac{\tilde{\gamma}^2}{\tilde{g}_k^2} n_3 \left[\tilde{\delta} - \frac{(\tilde{g}_1^2 - \tilde{g}_2^2)\tilde{\Gamma}_{12}\tilde{\delta} + \tilde{g}_\Lambda^2\tilde{\delta}_R}{\tilde{g}_\Lambda^2\tilde{\Gamma}_{12} + 4\tilde{\Gamma}_{12}^2 + 4\tilde{\delta}_R^2} \right], \quad (22)$$

$$n''_k = 0.0289p\lambda^3 \frac{\tilde{\gamma}^2}{\tilde{g}_k^2} n_3, \quad (23)$$

где n_3 описывает населенность возбужденного состояния, рассчитываемую по формуле

$$n_3 = \left[3 + \frac{2\tilde{\gamma}\tilde{g}_\Lambda^2}{\tilde{g}_1^2\tilde{g}_2^2}(1 + \tilde{\delta}^2) + \frac{\tilde{\gamma}\tilde{g}_\Lambda^4\tilde{\Gamma}_{12} + \tilde{g}_\Lambda^6/4 - (\tilde{g}_2^2 - \tilde{g}_1^2)^2\tilde{\Gamma}_{12}\tilde{\delta}^2 + 2\tilde{g}_\Lambda^2(\tilde{g}_2^2 - \tilde{g}_1^2)\tilde{\delta}_R\tilde{\delta}}{\tilde{g}_1^2\tilde{g}_2^2(\tilde{\delta}_R^2 + \tilde{\Gamma}_{12}^2 + \tilde{\Gamma}_{12}\tilde{g}_\Lambda^2/4)} \right]^{-1},$$

где знак тильды означает, что соответствующие переменные нормированы на Γ . Аргументы $\tilde{\delta}, \tilde{\delta}_R$ зависят от скорости атома вследствие однофотонного и остаточного эффекта Доплера, а затухание $\tilde{\Gamma}_{12}$ в системе нижних уровней определяется обратным временем пролета атома (для кювет с чистыми парами). Поэтому для получения расчетных данных, моделирующих экспериментальную ситуацию, соотношения (22), (23) должны быть усреднены по максвелловскому распределению скоростей, что выполняется численно.

На рис. 6 представлены расчетные кривые резонанса поглощения для переходов $^2S_{1/2} \rightarrow ^2P_{3/2}$ в цезии и калии при использовании интенсивного поля накачки и слабого пробного поля. В то время как для цезия роль четырехфотонной дефазировки не очень существенна, для калия, у которого для изотопов K_{41} расщепление основного состояния составляет всего 0,25 ГГц, т. е. почти на два порядка меньше расщепления в цезии, при интенсивности поля накачки 10 мВт/см² резонанс в отсутствие магнитного поля практически ненаблюдаем. Таким образом, четырехфотонный механизм дефазировки Л-резонанса устанавливает фундаментальный предел “наблюдаемости” резонанса поглощения в сильных полях, накладывая ограничение либо на интенсивность поля накачки, либо на величину расщепления основного состояния.

6 Заключение

Таким образом, четырехфотонные взаимодействия играют фундаментальную роль в формировании как спектров флуоресценции, так и спектров поглощения/дисперсии резонансной Л-системы в условиях КПН.

Типичная схема возможного эксперимента для регистрации спектра резонансной флуоресценции с применением атомного пучка приведена на рис. 1 (справа). Подобные эксперименты с применением атомного пучка и атомной ловушки подробно описаны, например, в [14] и [15], соответственно. Направления атомного и лазерного пучков выбраны взаимно перпендикулярными друг другу для устранения обычного эффекта Допплера. Спектр флуоресценции анализируется интерферометром Фабри-Перо. Расчеты для спектра флуоресценции ДА показывают, что для атомного пучка с 10^9 м^{-1} и с использованием 5 мм резонатора Фабри-Перо с добротностью $\sim 10^4$ можно ожидать более 10^5 из объема диаметром ~ 100 мкм. Для Λ -системы четырехфотонные взаимодействия, с одной стороны, уменьшают интенсивность флуоресценции по сравнению с ДА на фактор $(g_\Lambda/2\omega_{12})^2$, а, с другой стороны, увеличивают ее на фактор $(\gamma/\Gamma_{12})^{1/2}$. Для атома Cs, например, интенсивность насыщения $1,1 \text{ мВт}$ и соответствующий параметр $g_\Lambda = 10^2 \gamma$ достигаются уже при интенсивности лазера 30 мВт на длине волны 852 нм, сфокусированного в пятно размером около 1 мм. При этих легко реализуемых экспериментально параметрах можно ожидать, как показывают расчеты, уменьшения интенсивности рассеяния Λ -системы по сравнению с ДА на 2×10^2 и, следовательно, регистрации не менее ~ 100 , что не составляет проблемы для современных систем регистрации.

Авторы признательны Д. Н. Клышко, А. Шенцле и Р. Винандсу за плодотворные дискуссии. В. Н. З. признателен также фонду Гумбольдта (Германия) за поддержку.

А Динамический супероператор Λ -системы

Рассмотрим Λ -конфигурацию квантовых уровней атома (рис. 1) под действием двух лазерных полей с частотами вблизи рамановского резонанса, описываемую гамильтонианом в форме

$$\hat{\mathcal{H}}_\Lambda = \hat{\mathcal{H}}_a + \hat{\mathcal{H}}_I, \quad (24)$$

где

$$\hat{\mathcal{H}}_a = -\hbar\omega_{12} |2\rangle \langle 2| + \hbar\omega_{13} |3\rangle \langle 3|$$

описывает собственный гамильтониан атома (энергия уровня $|1\rangle$ принята за нуль, так что проекционный оператор $|1\rangle \langle 1|$ отсутствует в гамильтониане), а

$$\hat{\mathcal{H}}_I = \hbar g \cos(\omega_L t + \varphi)(|1\rangle \langle 3| + |3\rangle \langle 1|) + \hbar g' \cos(\omega'_L t + \varphi')(|2\rangle \langle 3| + |3\rangle \langle 2|)$$

описывает гамильтониан взаимодействия атомной системы с двумя световыми полями с частотами ω_L и ω'_L с учетом зависимости возбуждения от фаз поля. Константы взаимодействия, т. е. частоты Раби, зависят от амплитуд A_{ω_L} , $A_{\omega'_L}$ внешнего поля и от дипольных матричных элементов d_{13} , d_{23} :

$$g = \frac{1}{\hbar} d_{13} A_{\omega_L}, \quad g' = \frac{1}{\hbar} d_{23} A_{\omega'_L}. \quad (25)$$

Интерес представляет лишь случай наличия однофотонного резонанса, когда ω_L и ω'_L близки к ω_{13} и ω_{23} , соответственно. Мы можем переписать $\hat{\mathcal{H}}_a$ в форме

$$\hat{\mathcal{H}}_a = \hat{\mathcal{H}}_0 + \hat{\mathcal{H}}_\Delta, \quad (26)$$

где “невозмущенный” гамильтониан

$$\hat{\mathcal{H}}_0 = \hbar(\omega_L |3\rangle \langle 3| - \Delta |2\rangle \langle 2|), \quad (27)$$

включающий бигармоническую частотную расстройку $\Delta = \omega'_L - \omega_L \approx \omega_{12}$, описывает свободную прецессию с двумя лазерными частотами. “Возмущающий” гамильтониан $\hat{\mathcal{H}}_\Delta$ может быть записан в форме

$$\hat{\mathcal{H}}_\delta = -\hbar\delta |3\rangle \langle 3| + \hbar\delta_R |2\rangle \langle 2|,$$

где

$$\delta = \omega_L - \omega_{13}, \quad \delta_R = \omega'_L - \omega_L - \omega_{12}$$

описывают однофотонную расстройку для перехода $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$ и двухфотонную рамановскую расстройку, соответственно. Обе расстройки могут быть нулевыми при соответствующем выборе лазерных частот.

Динамика атомной системы с гамильтонианом (26) может быть охарактеризована как комбинация быстрой (обязанной $\hat{\mathcal{H}}_0$) и медленной (обязанной $\hat{\mathcal{H}}_\delta$) прецессии, так что целесообразно перейти к представлению взаимодействия с невозмущенным унитарным преобразованием

$$\mathcal{U}_0(t) = \exp \left[-(i/\hbar)\hat{\mathcal{H}}_0 t \right].$$

В ПВВ [6] мы можем пренебречь быстро осциллирующими членами, так что гамильтониан (24) принимает вид

$$\hat{\mathcal{H}}_\Lambda = \hat{\mathcal{H}}_\delta + \hat{\mathcal{H}}_p \hbar[-\delta |3\rangle \langle 3| + \delta_R |2\rangle \langle 2| + (g_\Lambda/2)(|c\rangle \langle 3| + \text{h. c.})], \quad (28)$$

который является эффективным ПВВ-гамильтонианом системы. Здесь мы ввели связанное $(|c\rangle)$ и ортогональное ему несвязанное $(|n\rangle)$ квантовые состояния

$$|c\rangle = g_\Lambda^{-1} \left(g e^{-i\varphi} |1\rangle + g' e^{-i\varphi'} |2\rangle \right), \quad |n\rangle = -g_\Lambda^{-1} \left(g' e^{-i\varphi} |1\rangle - g e^{-i\varphi'} |2\rangle \right). \quad (29)$$

Состояние $|c\rangle$ связано с возбужденным уровнем e , причем эффективная константа связи есть $g_\Lambda = \sqrt{g^2 + g'^2}$. Для нулевой рамановской расстройки ($\delta_R = 0$) нетрудно видеть, что гамильтониан (28) описывает двухуровневую систему. Это может быть продемонстрировано нагляднее, если подставить в соотношение (28) выражение $|2\rangle \langle 2|$, соответствующее обратному преобразованию (29),

$$|1\rangle = g_\Lambda^{-1} \left(g' e^{i\varphi'} |c\rangle + g e^{-i\varphi} |n\rangle \right), \quad |2\rangle = g_\Lambda^{-1} \left(g e^{i\varphi} |c\rangle - g' e^{-i\varphi'} |n\rangle \right),$$

приводящее к результату

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_\Lambda = & \hbar [(\delta + \delta_R g^2/g_\Lambda^2) |c\rangle \langle c| + (\delta + \delta_R g'^2/g_\Lambda^2) |n\rangle \langle n|] \\ & + \hbar\delta_R \frac{gg'}{g_\Lambda^2} \left[e^{i(\varphi-\varphi')} |c\rangle \langle n| + \text{h. c.} \right] + \frac{\hbar g_\Lambda}{2} (|c\rangle \langle 3| + \text{h. c.}). \end{aligned}$$

В базисе $\{|3\rangle, |c\rangle, |n\rangle\}$ соответствующая матрица имеет вид

$$H_\Lambda = \begin{pmatrix} 0 & \hbar g_\Lambda/2 & 0 \\ \hbar g_\Lambda/2 & \hbar\delta & 0 \\ 0 & 0 & \hbar\delta \end{pmatrix} + \frac{\hbar\delta_R}{g_\Lambda^2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & g^2 & gg' e^{i(\varphi-\varphi')} \\ 0 & gg' e^{-i(\varphi-\varphi')} & g'^2 \end{pmatrix}$$

и может быть при $\delta_R = 0$ немедленно разложена на 2×2 -матрицу двухуровневой системы, “одетой” атомным полем, и одного, несвязанного состояния, т. е. возбужденное и

связанные состояния образуют эффективную двухуровневую систему $|e\rangle \oplus |c\rangle$. Для простоты переопределим $|1\rangle$ как $\exp(-i\varphi)|1\rangle$ и $|2\rangle$ как $\exp(-i\varphi')|2\rangle$, так что мы можем переписать соотношение (29) в форме

$$|c\rangle = g_{\Lambda}^{-1}(g|1\rangle + g'|2\rangle), \quad |n\rangle = -g_{\Lambda}^{-1}(g'|1\rangle - g|2\rangle),$$

которая не содержит явно фазовых факторов.

С учетом полученного представления ПВВ-гамильтониана соответствующая ему динамическая часть лиувиллиана имеет вид

$$\mathcal{L}_{\Lambda} = \frac{i}{\hbar} \left[\hat{\mathcal{H}}_{\Lambda}, \odot \right]. \quad (30)$$

Полный лиувиллиан L_{RWA} дополнительно содержит релаксационный оператор, задаваемый здесь феноменологически.

A.1 Преобразование ПВВ-лиувиллиана

Исходным представлением ПВВ-лиувиллиана является матрица в неэрмитовом базисе $\{\hat{e}_k\} = \hat{P}_{\alpha,\beta} = |\alpha\rangle\langle\beta|$, где $k = (\alpha, \beta)$ and $\alpha, \beta = 1, 2, 3$, которая на основе соотношений (30) может быть представлена комплексными матричными элементами

$$L_{\text{RWA}} = \begin{pmatrix} -\gamma - \gamma' & \gamma & \gamma' & 0 & 0 & -ig/2 & ig/2 & -ig'/2/2 & ig'/2 \\ 0 & -\gamma_{12} & \gamma_{12} & 0 & 0 & ig/2 & -ig/2 & 0 & 0 \\ 0 & w & -w & 0 & 0 & 0 & 0 & ig'/2 & -ig'/2 \\ 0 & 0 & 0 & i\delta_{\text{R}} - \Gamma_{12} & 0 & ig'/2 & 0 & 0 & -ig'/2 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -i\delta_{\text{R}} - \Gamma_{12} & 0 & -ig'/2 & ig/2 & 0 \\ -ig/2 & ig/2 & 0 & ig'/2 & 0 & -i\delta - \Gamma_{13} & 0 & 0 & 0 \\ ig/2 & -ig/2 & 0 & 0 & -ig'/2 & 0 & i\delta - \Gamma_{13} & 0 & 0 \\ -ig'/2 & 0 & ig'/2 & 0 & ig/2 & 0 & 0 & -i\delta - \Gamma_{23} & 0 \\ ig'/2 & 0 & -ig'/2 & -ig/2 & 0 & 0 & 0 & 0 & i\delta - \Gamma_{23} \end{pmatrix}.$$

Для перехода к более удобным эрмитовым базисам можно ввести два соответствующих преобразования V_c и V_{c1} , которые имеют вид

$$V_c = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & g/g_{\Lambda} & 0 & g'/g_{\Lambda} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & g/g_{\Lambda} & 0 & g'/g_{\Lambda} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -g'/g_{\Lambda} & 0 & g/g_{\Lambda} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -g'/g_{\Lambda} & 0 & g/g_{\Lambda} \end{pmatrix}, \quad (31)$$

$$V_{c1} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -i/\sqrt{2} & i\sqrt{2} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -i/\sqrt{2} & i/\sqrt{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -i/\sqrt{2} & i/\sqrt{2} \end{pmatrix}.$$

V_c вводит две пары поляризационных операторов $\hat{P}_c, \hat{P}_c^+, \hat{P}_n,$ и \hat{P}_n^+ для переходов на возбужденный уровень из связанного и несвязанного состояний, а V_{c1} вводит эрмитовы косинус–синус операторы (аналоги координат и импульсов или матрицам Паули $\hat{\sigma}_1, \hat{\sigma}_2$ в двухуровневой системе):

$$\begin{aligned}\hat{q}_g &= (\hat{P}_{12} + \hat{P}_{21})/\sqrt{2}, & \hat{p}_g &= -i(\hat{P}_{12} - \hat{P}_{21})/\sqrt{2}, \\ \hat{q}_c &= (\hat{P}_c + \hat{P}_c^+)/\sqrt{2}, & \hat{p}_c &= -i(\hat{P}_c - \hat{P}_c^+)/\sqrt{2}, \\ \hat{q}_n &= (\hat{P}_n + \hat{P}_n^+)/\sqrt{2}, & \hat{p}_n &= -i(\hat{P}_n - \hat{P}_n^+)/\sqrt{2}.\end{aligned}\quad (32)$$

Здесь индексы $g, c,$ и n отвечают основной ($1 \leftrightarrow 2$), связанной ($c \leftrightarrow 3$) и несвязанной ($n \leftrightarrow 3$) подсистемам.

После применения преобразований (31) к ПВВ-лиувиллиану L_{RWA} для преобразованного оператора $L_{RWA} = V_{c1} V_c L_{RWA} V_c^{-1} V_{c1}^{-1}$ получаем

$$L_{RWA} = \left(\begin{array}{ccc|cc|cc|cc} -\gamma - \gamma' & \gamma & \gamma' & 0 & 0 & 0 & g_\Lambda/\sqrt{2} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\gamma_{12} & \gamma_{12} & 0 & 0 & 0 & -\xi^2 g_\Lambda/\sqrt{2} & 0 & 0 & \xi \eta g_\Lambda/\sqrt{2} \\ 0 & w & -w & 0 & 0 & 0 & -\eta^2 g_\Lambda/\sqrt{2} & 0 & 0 & -\xi \eta g_\Lambda/\sqrt{2} \\ \hline 0 & 0 & 0 & -\Gamma_{12} & -\delta_R & 0 & -\xi \eta g_\Lambda & 0 & 0 & -(\xi^2 - \eta^2) g_\Lambda/2 \\ 0 & 0 & 0 & \delta_R & -\Gamma_{12} & 0 & 0 & -g_\Lambda/2 & 0 & 0 \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -\Gamma_c & \delta & \Delta\Gamma & 0 & 0 \\ -g_\Lambda/\sqrt{2} & \xi^2 g_\Lambda/\sqrt{2} & \eta^2 g_\Lambda/\sqrt{2} & \xi \eta g_\Lambda & 0 & -\delta & -\Gamma_c & 0 & 0 & \Delta\Gamma \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & g_\Lambda/2 & \Delta\Gamma & 0 & -\Gamma_n & \delta & 0 \\ 0 & -\xi \eta g_\Lambda/\sqrt{2} & \xi \eta g_\Lambda/\sqrt{2} & (\xi^2 - \eta^2) g_\Lambda/2 & 0 & 0 & \Delta\Gamma & -\delta & 0 & -\Gamma_n \end{array} \right), \quad (33)$$

где использованы следующие обозначения:

$$\begin{aligned}\xi &= g/g_\Lambda, & \eta &= g'/g_\Lambda, \\ \Gamma_c &= \xi^2 \Gamma_{13} + \eta^2 \Gamma_{23}, & \Gamma_n &= \eta^2 \Gamma_{13} + \xi^2 \Gamma_{23}, \\ \Delta\Gamma &= \xi \eta (\Gamma_{13} - \Gamma_{23})\end{aligned}$$

Блочная структура преобразованного динамического супероператора L_{RWA} , обозначенная сплошными линиями в (33), более подробно обсуждается в следующем разделе.

В отличие от исходного комплексного представления преобразованный оператор L_{RWA} имеет реальные матричные элементы, поскольку он соответствует эрмитовому базису $\{\hat{e}_k\}$.

Для симметричной Λ -системы, когда $\Gamma_{13} = \Gamma_{23}$, $g = g'$ и, соответственно, $\Delta\Gamma = 0$, $\xi = \eta$, выражение (33) принимает вид

$$L_{RWA} = \left(\begin{array}{ccc|cc|cc|cc} -\gamma - \gamma' & \gamma & \gamma' & 0 & 0 & 0 & g_\Lambda/\sqrt{2} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\gamma_{12} & \gamma_{12} & 0 & 0 & 0 & -g_\Lambda/2\sqrt{2} & 0 & 0 & g_\Lambda/2\sqrt{2} \\ 0 & w & -w & 0 & 0 & 0 & -g_\Lambda/2 & 0 & 0 & -g_\Lambda/2\sqrt{2} \\ \hline 0 & 0 & 0 & -\Gamma_{12} & -\delta_R & 0 & -g_\Lambda/2 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \delta_R & -\Gamma_{12} & 0 & 0 & -g_\Lambda/2 & 0 & 0 \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -\Gamma & \delta & 0 & 0 & 0 \\ -g_\Lambda/\sqrt{2} & g_\Lambda/2\sqrt{2} & g_\Lambda/2 & g_\Lambda/2 & 0 & -\delta & -\Gamma & 0 & 0 & 0 \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & g_\Lambda/2 & 0 & 0 & -\Gamma & \delta & 0 \\ 0 & -g_\Lambda/2\sqrt{2} & g_\Lambda/2\sqrt{2} & 0 & 0 & 0 & 0 & -\delta & 0 & -\Gamma \end{array} \right).$$

A.2 Блочная структура динамического супероператора в ПВВ

Физический смысл супероператора L_{RWA} , определенного соотношением (33), наиболее прозрачен при рассмотрении его блочной структуры. Удобно разбить матрицу (33) на

блоки в соответствии с определенным набором поляризационных переменных (32). По аналогии, блоки матрицы могут быть пронумерованы индексом p , который соответствует населенностям, индексами g , c и n , которые соответствуют поляризации основной ($1 \leftrightarrow 2$), связанной ($1 \leftrightarrow 3$) и несвязанной ($1 \leftrightarrow 2$) подсистем, соответственно. В этих обозначениях матрица (33) выглядит следующим образом:

$$L_{\text{RWA}} = \begin{pmatrix} L_{pp} & 0 & -L_{cp}^T & -L_{np}^T \\ 0 & L_{gg} & -L_{cg}^T & -L_{ng}^T \\ L_{cp} & L_{cg} & L_{cc} & -L_{nc}^T \\ L_{np} & L_{ng} & L_{nc} & L_{nn} \end{pmatrix}. \quad (34)$$

Она состоит из девяти ненулевых независимых блоков. Четыре диагональных блока, L_{pp} , L_{gg} , L_{cc} и L_{nn} , описывают динамику населенностей (n_g , n_c , и n_n) и поляризаций основного состояний, связанной и несвязанной подсистем, соответственно. Пять ненулевых недиагональных матриц описывают динамику Λ -системы, обусловленную связями между рассматриваемыми базисными переменными. Антисимметричность этих пяти блоков есть следствие чисто осцилляционного характера динамики, обусловленной взаимодействием с внешним полем, в то время как внутренняя динамика включает релаксацию и потому представлена также и матричными элементами, которые приводят к ненулевым реальным составляющим в собственных значениях матрицы L_{RWA} .

Из приведенной блочной структуры (34) нетрудно видеть, что связь между населенностями и поляризацией основного состояния отсутствует, поскольку ($L_{gp} = 0$). Это отражает то обстоятельство, что возбуждающее поле непосредственно воздействует только на переходы в возбужденное состояние, а однофотонное возбуждение основного состояния отсутствует.

Описанное блочное представление динамического супероператора в ПВВ удобно для качественного обсуждения влияния параметров Λ -системы на ее динамику, поскольку оно сводится к изменению только внутренней структуры введенных блоков в представлении (34).

В Супероператорный расчет общей формулы для тонкой структуры спектра

Рассчитаем двухвременную корреляционную функцию (10), определяющую спектр атомной флуоресценции:

$$\mathcal{K}(\tau) = \langle \hat{\rho}_0 S(0, t) | \hat{\sigma}^-(t) [S(t, t + \tau) \hat{\sigma}^+(t + \tau)] \rangle. \quad (35)$$

Здесь полный эволюционный супероператор (см. (2)) имеет вид

$$S(0, t) = S_{\text{RWA}}(t) \tilde{S}_0(t), \quad (36)$$

где $S_{\text{RWA}}(t)$ — супероператор ПВВ, а $\tilde{S}_0(t)$ — супероператор возмущенной эволюции, обусловленной нерезонансным возмущением. Супероператор $\tilde{S}_0(t)$ описывает преобразование исходного гамильтониана системы $\hat{\mathcal{H}}(t)$ вида

$$\hat{\mathcal{H}}(t) \rightarrow \hat{\mathcal{H}}_0 + \delta \hat{\mathcal{H}}(t) = \hat{\mathcal{H}}_0 + \frac{\hbar g \Lambda}{2} (\hat{\tau} e^{i\Delta t} + \hat{\tau}^+ e^{-i\Delta t}), \quad (37)$$

где $\hat{\tau}$ определен выражением (9). В первом порядке теории возмущений мы можем ввести супероператор $\tilde{S}_0(t)$, который соответствует гамильтониану (37), в виде

$$\tilde{S}_0(t) = S_0(t) + \delta S_0(t) = S_0(t) + \int_0^t \delta \mathcal{L}_p(\tau) d\tau S_0(t),$$

где лиувиллиан возмущения имеет вид

$$\delta \mathcal{L}_p(\tau) = (i/\hbar) \left[\delta \hat{\mathcal{H}}(\tau), \odot \right]. \quad (38)$$

Интегрируя $\delta S_0(t)$ по τ и используя соотношение (38) совместно с (37), мы получаем

$$\delta S_0(t) = \frac{g\Lambda}{2\Delta} \left[\hat{\tau} e^{i\Delta t} - \hat{\tau}^+ e^{-i\Delta t}, \odot \right] S_0(t), \quad (39)$$

что описывает осцилляции на частоте Δ .

Супероператор $S_0(t)$ в выражении (39) описывает невозмущенную динамику, представленную гамильтонианом (27), которая учитывает свободную прецессию всех переходов Λ -системы. Последняя представляется в виде

$$S_0(t) = S_{12}^+ e^{-i\Delta t} \oplus S_{12}^+ e^{+i\Delta t} \oplus S_{13}^+ e^{-i\omega_L t} \oplus S_{13}^+ e^{i\omega_L t} \oplus S_{23}^+ e^{-i\omega'_L t} \oplus S_{23}^+ e^{i\omega'_L t} \oplus P_0, \quad (40)$$

где описывающие соответствующие супероператоры матрицы S_{kl}^\pm есть одномерные собственные проекторы на соответствующие собственной прецессии переменные, а P_0 — проектор на трехмерное подпространство неосциллирующих переменных, т. е. населенностей. После подстановки соотношения (40) в (39) получаем

$$\begin{aligned} \delta S_0(t) = & \frac{g\Lambda}{2\Delta} \left\{ [\hat{\tau}, \odot] S_{13}^+ e^{-i(\omega_L - \Delta)t} - [\hat{\tau}^+, \odot] S_{23}^+ e^{-i(\omega'_L + \Delta)t} \right. \\ & \left. - [\hat{\tau}^+, \odot] S_{13}^- e^{i(\omega_L - \Delta)t} + [\hat{\tau}, \odot] S_{23}^- e^{i(\omega'_L + \Delta)t} \right\}. \end{aligned} \quad (41)$$

Подставляя далее соотношение (41) в (36) и используя выражение (35) совместно с соотношением $\hat{\rho}_0 S(0, t) \rightarrow \langle 0|$ для $t \rightarrow \infty$, обусловленным затуханием всех собственных колебаний, соответствующих ненулевым собственным значениям, в конечном счете мы представляем корреляционную функцию в форме

$$\mathcal{K}(t, t + \tau) = \langle 0 | \delta S_0(t) \hat{\sigma}^- \cdot e^{\mathcal{L}_{\text{RWA}} \tau} \delta S_0(t + \tau) \hat{\sigma}^+ \rangle, \quad (42)$$

где символ “ \cdot ” обозначает произведение преобразованных операторов, а $\sigma^\pm = \sigma_{13}^\pm + \sigma_{23}^\pm$ есть сумма комплексных амплитуд, осциллирующих с оптическими частотами.

Если затем применить δS_0 к $\hat{\sigma}^\pm$ и вспомнить, что $\hat{\sigma}_{13}^\pm, \hat{\sigma}_{23}^\pm$ являются собственными векторами для собственных проекторов S_{13}^\pm, S_{23}^\pm , мы получим

$$\delta S_0(t) \hat{\sigma}^- = -\frac{g\Lambda}{2\Delta} \left\{ [\hat{\tau}^+, \hat{\sigma}_{13}^-] e^{i(\omega_L - \Delta)t} + [\hat{\tau}, \hat{\sigma}_{23}^-] e^{i(\omega'_L + \Delta)t} \right\}, \quad (43)$$

$$\delta S_0(t + \tau) \hat{\sigma}^+ = \frac{g\Lambda}{2\Delta} \left\{ [\hat{\tau}, \hat{\sigma}_{13}^+] e^{-i(\omega_L - \Delta)(t + \tau)} + [\hat{\tau}^+, \hat{\sigma}_{23}^+] e^{-i(\omega'_L + \Delta)(t + \tau)} \right\}, \quad (44)$$

где коммутаторы комплексных амплитуд переходов $1 \leftrightarrow 3$, $2 \leftrightarrow 3$ с $\hat{\tau}$, $\hat{\tau}^+$ описываются выражениями

$$\begin{aligned} [\tau^+, \hat{\sigma}_{13}^-] &= -\frac{\hat{\sigma}_{12}^-}{\sqrt{2}}, & [\tau, \hat{\sigma}_{23}^-] &= -\frac{\hat{\sigma}_{12}^+}{\sqrt{2}}, \\ [\tau, \hat{\sigma}_{13}^+] &= \frac{\hat{\sigma}_{12}^+}{\sqrt{2}}, & [\tau^+, \hat{\sigma}_{23}^+] &= \frac{\hat{\sigma}_{12}^-}{\sqrt{2}}. \end{aligned}$$

После подстановки соотношений (43) и (44) в (42) и пренебрежения членами, осциллирующими относительно t , с использованием представления ПВВ-динамики в терминах собственных векторов и соответствующих собственных значений, соотношение (42) принимает окончательную форму (12).

С Преобразования супероператора временной эволюции в ПВВ

Для Λ -системы, описываемой не зависящим от времени гамильтонианом $\hat{\mathcal{H}}$, супероператор временной эволюции унитарен и описывается экспонентной $\mathcal{S}(t) = \exp(\mathcal{L}_{\mathcal{H}}t)$ с чисто динамическим лиувиллианом типа (30) и может быть представлен в виде

$$\mathcal{S}(t) = \mathcal{U}(t) \odot \mathcal{U}^{-1}(t) = \sum_{\alpha, \beta} e^{-i(\omega_\alpha - \omega_\beta)t} |\alpha\rangle \langle \alpha| \odot |\beta\rangle \langle \beta|, \quad (45)$$

где ω_α и $|\alpha\rangle$ — собственные боровские частоты и соответствующие собственные векторы гамильтониана, а унитарной преобразование $\mathcal{U}(t)$ задается соотношением

$$\mathcal{U}(t) = \exp\left[-(i/\hbar)\hat{\mathcal{H}}t\right].$$

Далее, мы можем использовать представление взаимодействия для супероператора $\mathcal{L}_{\mathcal{H}} + \mathcal{L}_{\text{r}}$, который отличается от чисто динамического лиувиллиана, соответствующего $\mathcal{S}(t)$, наличием релаксационного супероператора \mathcal{L}_{r} , и рассматривать $\mathcal{L}_{\mathcal{H}}$ как лиувиллиан невозмущенной временной эволюции $\mathcal{S}(t)$. В представлении взаимодействия зависящий от времени релаксационный супероператор имеет вид

$$\mathcal{L}_{\text{r}}^{\text{I}}(t) = \sum_{\alpha, \beta; \mu, \nu} e^{i[(\omega_\alpha - \omega_\beta) - (\omega_\mu - \omega_\nu)]t} L_{\alpha\beta, \mu\nu} |\alpha\rangle \langle \mu| \odot |\nu\rangle \langle \beta|, \quad (46)$$

где

$$L_{\alpha\beta, \mu\nu} = \sum_{k, l; m, n} \langle \alpha | k \rangle \langle l | \beta \rangle L_{kl, mn} \langle m | \mu \rangle \langle \nu | n \rangle$$

обозначают матричные элементы релаксационного супероператора в терминах собственного базиса гамильтониана $\hat{\mathcal{H}}$.

Рассмотрим важный частный случай, когда осцилляции в выражении (46) являются быстрыми по сравнению со скоростями всех релаксационных процессов, так что возможно усреднение по этим осцилляциям. Тогда результирующий эффективный (“редуцированный”) релаксационный супероператор имеет вид

$$\mathcal{L}_{\text{re}} = \sum_{\alpha, \beta} L_{\alpha\alpha, \beta\beta} |\alpha\rangle \langle \beta| \odot |\beta\rangle \langle \alpha| + \sum_{\alpha \neq \beta} L_{\alpha\beta, \alpha\beta} |\alpha\rangle \langle \alpha| \odot |\beta\rangle \langle \beta|, \quad (47)$$

где предположено, что все частоты $\omega_{\alpha\beta}$, соответствующие атомным переходам $\beta \rightarrow \alpha$, ($\alpha \neq \beta$), различны. Первый член в (47) описывает релаксацию населенностей за счет переходов $\beta \rightarrow \alpha$ с других уровней ($\beta \neq \alpha$) и радиационный распад ($\beta = \alpha$). Второй член описывает релаксацию поляризационных переменных. Соответствующая матрица имеет размерность $n \times n$, где $n = 3$ — число уровней Λ -системы.

Супероператор (47) коммутирует с динамическим лиувиллианом, поскольку они имеют общий собственный базис. С учетом этого обстоятельства релаксация атомных осцилляций описывается просто соответствующими скоростями затухания

$$\Gamma_{\alpha\beta} = -\Re L_{\alpha\beta,\alpha\beta}.$$

Если все эти величины не равны нулю, стационарный (нуль-) вектор $\langle \hat{\rho}^{\text{st}} |$ имеет ненулевые компоненты только в подпространстве релаксации населенностей и фактически описывается n -компонентным нуль-вектором $\rho_{\alpha}^{\text{st}}$ $n \times n$ -подматрицы $L_{\alpha\alpha,\beta\beta}$.

Список литературы

- [1] Б. Д. Агапьев, М. Б. Горный, Б. Г. Матисов, Ю. В. Рождественский, УФН **36**, 763 (1993).
- [2] E. Arimondo, *Progress in Optics* (North Holland, Amsterdam, 1996), Vol. 35, p. 257.
- [3] M. R. Ferguson, Z. Ficek, B. J. Dalton, Phys. Rev. A **54**, 2379 (1996).
- [4] L. M. Narducci, M. O. Scully, G.-L. Oppo, R. Pu, and J. R. Tredicce, Phys. Rev. A **42**, 1630 (1990).
- [5] Б. А. Гришанин, Квантовая Электроника **6**, 1409 (1979).
- [6] L. Mandel and E. Wolf, *Optical Coherence and Quantum Optics*, Cambridge Univ. Press, 1995.
- [7] B. R. Mollow, Phys. Rev. **188**, 1969 (1969).
- [8] И. Р. Шен, *Принципы нелинейной оптики*, Изд-во Наука: Москва, 1989.
- [9] Р. Глаубер, в: *Квантовая оптика и квантовая радиофизика*, Изд-во Мир: Москва, 1966.
- [10] Б. А. Гришанин, *Квантовая электродинамика для радиофизиков*, Изд-во Моск. Ун-та: Москва, 1981.
- [11] Van M. Lu, G. Mainfray, C. Manus, I. Tugov, Phys. Rev. A **7**, 91 (1973).
- [12] O. Schmidt, K.-M. Knaak, R. Wynands, D. Meschede, Phys. Rev. A **54**, R27 (1996); S. Brandt, A. Nagel, R. Wynands, D. Meschede, submitted for publication.
- [13] E. Arimondo, Phys. Rev. A **54**, 2216 (1996).
- [14] D. J. Gauthier, Y. Zhu, T. W. Mossberg, Phys. Rev. Lett. **66**, 2460 (1991).
- [15] Y. Stalgies, I. Siemers, B. Appasamy, T. Altevogt, P. E. Toschek, Europhys. Lett. **35**, 259 (1996).

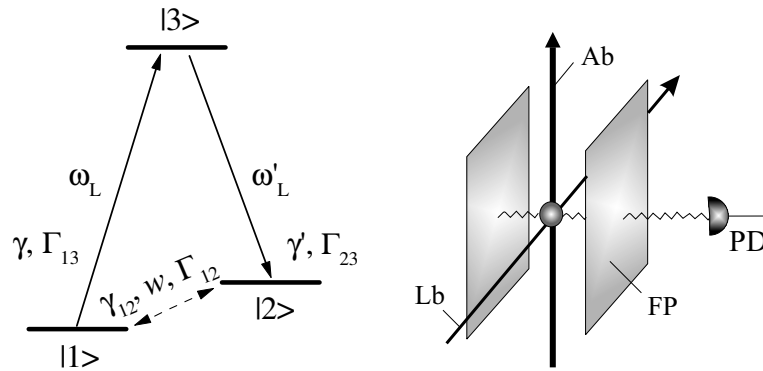


Рис. 1: Λ -система (слева) и типичная схема эксперимента для регистрации спектра резонансной флуоресценции, индуцированной двумя монохроматическими лазерными полями с частотами ω_L и ω'_L (справа). $\gamma, \gamma', \gamma_{12}$ — скорости релаксации населенности верхних подуровней; $\Gamma_{13}, \Gamma_{23}, \Gamma_{12}$ — скорости дефазировки; w — скорость накачки на уровень 2. Спектр флуоресценции атомов анализируется с помощью интерферометра Фабри-Перо (FP) в направлении, перпендикулярном направлениям лазерных (Lb) и атомного (Ab) пучков.

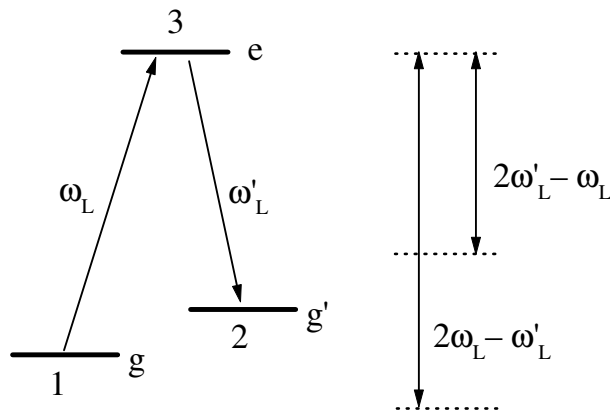


Рис. 2: Λ -резонанс и дополнительные резонансы, определяющие тонкую структуру спектра резонансной флуоресценции.

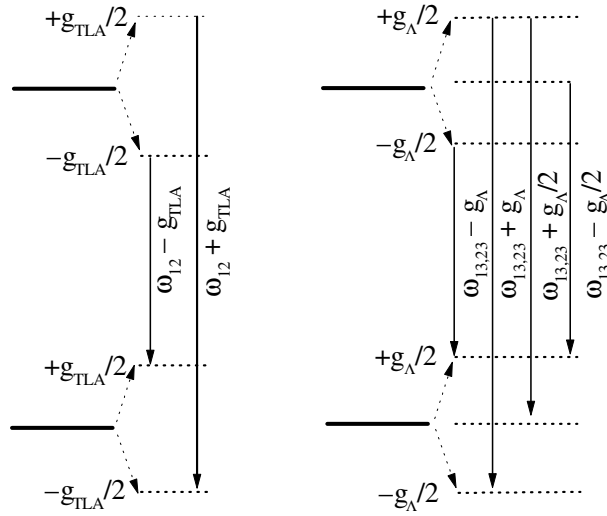


Рис. 3: Формирование нутаций Раби в ДА (слева) и в Λ -системе (справа). Показаны лишь минимальный набор переходов между квазиэнергетическими состояниями, соответствующих набору всех возможных линий в спектре флуоресценции.

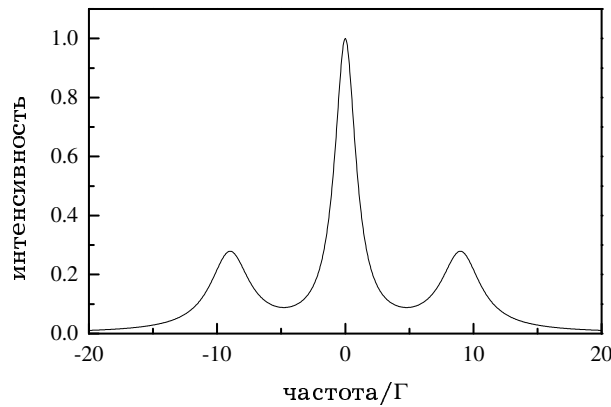


Рис. 4: Рассчитанный в рамках ПВВ спектр резонансной флуоресценции Λ -системы, возбужденной двумя интенсивными лазерными полями равной интенсивности в состоянии КПН, на частоте перехода ω_{13} . Точно такая же структура имеется в спектре на частоте ω_{23} . В расчетах использовались следующие параметры: $\tilde{\Gamma}_{12} = 0.01$, $\tilde{\gamma} = 1.8$ и $\tilde{g}_{\Lambda} = 9$.

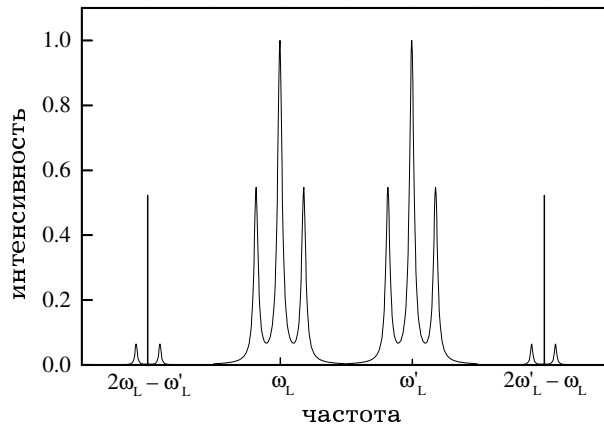


Рис. 5: Спектр резонансной флуоресценции Λ -системы (переход $^2S_{1/2} \rightarrow ^2P_{3/2}$ в атоме цезия), возбужденной двумя интенсивными лазерными полями в состоянии КПН.

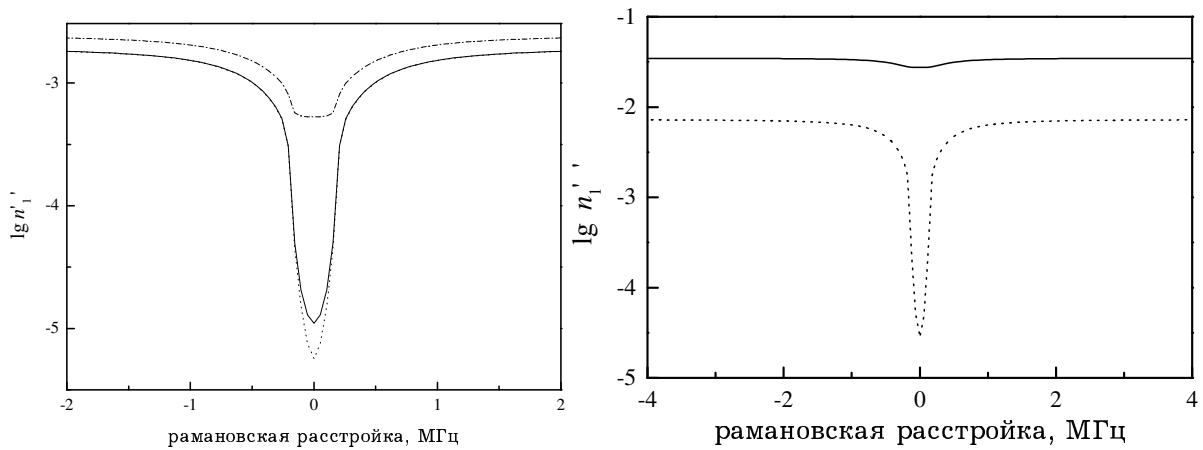


Рис. 6: Резонансы поглощения в парах цезия (а) и калия (б) с учетом (сплошная линия) и без учета (пунктирная линия) четырехфотонной дефазировки. Штрих-пунктирная линия на рис. (а) соответствует расчету с учетом четырехфотонной дефазировки, в котором расстояние между нижними уровнями было специально уменьшено в 10 раз. Интенсивность полей в расчетах равна $I_1 = 0,01$ мВт/см² и $I_2 = 10$ мВт/см².

Contribution due to Four-Photon Interactions into Coherent Population Trapping in a Λ -System

B. A. Grishanin, V. N. Zadkov

*International Laser Center, M.V.Lomonosov Moscow State University
Moscow 119899, Russia*

D. Meschede

*Institut für Angewandte Physik der Universität Bonn
Wegelerstr. 8, D-53115 Bonn, Germany*

The resonance fluorescence spectrum of a Λ -system driven by two resonant laser fields is calculated in the Markov relaxation approximation. In the strong field limit, analytical formulae are derived for both the rotating wave approximation and beyond. It is shown that under coherent population trapping condition resonance fluorescence does not vanish. Its spectrum consists of two Mollow-type triplets centered at the transition frequencies of the Λ -system and of the “fine” structures centered at the four-photon transition frequencies, the latter imposing a fundamental limit on the lowest dephasing rate of the Raman resonance due to the dipole transitions’ radiative decay contribution to dynamics of the ground state. It is shown that four-photon dephasing mechanism affects also absorption spectrum of the Λ -system significantly reducing a dip in an absorptive profile, up to its vanishing with increasing the laser fields intensity.