4. *Amaldi E., Cosmelli C., Frasca S.* et al. // Nuovo Cimento. 1989. **C12**, No. 1. P. 75.
5. *Dickson C. A., Schutz B. F.* // Phys. Rev. 1994. **D6**, No. 51. P. 2644.
6. *Тихонов В.И.* Оптимальный прием. М., 1983.
7. *Тихонов В.И.* Статистическая радиотехника. М., 1982.
8. *Бендат Д., Пирсол А.* Прикладной анализ случайных данных. М., 1989.
9. *Лезин Ю.С.* Оптимальные фильтры и накопители импульсных сигналов. М., 1972.
10. *Левин Б.Р.* Статистическая радиотехника. М., 1994.
11. *Тихонов В.И.* Выбросы случайных процессов. М., 1970.

Поступила в редакцию
06.03.98

ОПТИКА И СПЕКТРОСКОПИЯ

УДК 621.378.001

НЕЛИНЕЙНАЯ СТОЛКНОВИТЕЛЬНАЯ РЕЛАКСАЦИЯ ДВУХУРОВНЕВЫХ АТОМОВ В ЛАЗЕРНОМ ПОЛЕ

Б. А. Гришанин

(*кафедра общей физики и волновых процессов*)

На основе квантового аналога уравнения Больцмана рассматривается задача расчета возбуждения двухуровневых атомов в газовой фазе с учетом их резонансного диполь-дипольного столкновительного уширения. Анализируется зависимость параметров релаксационной матрицы от параметров лазерного поля, обусловленная зависимостью от поля состояния сталкивающихся активных атомов.

Введение

Столкновения идентичных атомов приводят к резонансному обмену квантами между ними и как следствие — к существенному уширению атомных линий. Физическая природа уширения данного типа — резонансного столкновительного уширения (РСУ) — впервые адекватно описана в работе [1]. Однако его роль в распространении сильного лазерного поля до сих пор детально не исследована, во всяком случае теория РСУ далека от той степени детализации, до которой доведена теория столкновительного уширения, обусловленного буферным газом [2–4]. В то же время РСУ требует точного описания его механизма для понимания физики распространения лазерного излучения в плотных резонансных газовых средах, которое проявляет свойства, качественно отличные от случая разреженных сред [5]. С методической точки зрения РСУ выделяется среди остальных типов уширения — естественного радиационного, доплеровского и упругого столкновительного. В отличие от перечисленных уширений РСУ является принципиально нелинейным, поскольку результат столкновения зависит от состояния как рассматриваемого, так и окружающих атомов, определяемого лазерным полем. Нелинейность же нерезонансного уширения, обусловленного столкновениями с атомами буферного газа, проявляется лишь в достаточно сильных насыщающих полях [4], приводящих к преобразованию релаксации под действием осцилляций Раби.

В настоящей работе рассматривается система двухуровневых атомов, взаимодействующих с падающим лазерным излучением. Учитываются как процессы взаимодействия атомов с полем вакуума, т.е. естественное радиационное затухание, так и взаимодействие между атомами при столкновениях с учетом зависимости их состояния от поля. В этих условиях возникающая при описании распространения лазерного поля в среде квантовая задача расчета состояния атомов не может быть сведена к стандартному уравнению Блоха или Фоккера–Планка с наперед заданным релаксационным оператором, поскольку последний зависит от состояния других атомов. Таким образом, эта задача связана с более общей нелинейной квантовой проблемой, которая при естественном ее упрощении путем использования приближения парных столкновений является прямым аналогом уравнения Больцмана в статистической физике [6, 7].

1. Вывод уравнения Больцмана для газа двухуровневых атомов

Гамильтониан резонансного диполь-дипольного взаимодействия для двух атомов имеет вид

$$\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{d}} = f_{12}(\hat{\sigma}_1^+\hat{\sigma}_2^- + \hat{\sigma}_1^-\hat{\sigma}_2^+), \tag{1}$$

где $\hat{\sigma}_k^\pm$ — операторы внутриатомных переходов $1 \to 2$ и $2 \to 1$ в k-м атоме $(k = 1, 2)$, а $f_{12} = [3(\mathbf{d}_1\mathbf{n})(\mathbf{d}_2\mathbf{n}) - (\mathbf{d}_1\mathbf{d}_2)]/R_{12}^3$ — потенциал взаимодействия, где $\mathbf{d}_k$ — матричные элементы перехода в k-м атоме, R_{12} — межатомное расстояние, а $\mathbf{n} = \mathbf{R}_{12}/R_{12}$ — единичный вектор в направлении от атома 1 к атому 2. Взаимодействие (1) связано с обменом квантами возбуждения, который, подобно обмену квантами с электромагнитным полем вакуума, приводит к неупругой релаксации атома, зависящей как от концентрации атомов, так и от их состояния, определяемого полем излучения в среде.

Рассмотрим процесс случайного столкновения атомов, при котором атомы можно считать движущимися равномерно и прямолинейно по закону

$R_{12}(\tau) \cong a_0 + v|\tau - \tau_0|$, где a_0 — прицельное расстояние, а v — относительная скорость атомов. Оператор преобразования атомных переменных в результате столкновения имеет вид

$$S_{\mathrm{d}}(t) = \mathrm{T}\exp\left\{\frac{i}{\hbar}\int\limits_0^t \left[\hat{\mathcal{H}}_{\mathrm{d}}(\tau), \odot\right]\, d\tau\right\}, \qquad (2)$$

где $\odot$ — символ подстановки преобразуемых операторов [8] (в частности, $\left[\hat{B}, \odot\right]\hat{A} = \hat{B}\hat{A} - \hat{A}\hat{B}$). Усредняя (2) по параметрам столкновений, для столкновительного лиувиллиана преобразования операторных переменных 1-го атома получаем

$$\mathcal{L}_{\mathrm{d}} = N_0 \lim_{\Delta\to 0}\int \frac{1}{\Delta}\left\langle \left[\mathrm{Tr}' S(\Delta)\hat{\rho}' - 1\right]\, 2\pi a da\, v d\tau_0\right\rangle_{v,\mathbf{\Omega}}, \qquad (3)$$

где N_0 — концентрация атомов, $\langle\cdot\rangle_{v,\mathbf{\Omega}}$ — символ усреднения по скоростям и пространственной ориентации дипольных моментов, операция $\mathrm{Tr}'\ldots\hat{\rho}'$ реализует усреднение по квантовым переменным 2-го атома, предел $\Delta \to 0$ понимается в стандартном для физических марковских процессов смысле, т. е. время корреляции (здесь эффективное время пролета) рассматривается в расчете как бесконечно малое. Соответствующее преобразование матрицы плотности описывается транспонированным оператором $\mathcal{L}_{\mathrm{d}}^{\mathrm{T}}$. Поскольку усреднение носит пространственно-локальный характер, то в области столкновения атомов имеем $\hat{\rho}' = \hat{\rho}$, т. е. релаксационный оператор выражается через искомое состояние $\hat{\rho}$ первого атома в уравнении Фоккера–Планка

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = \mathcal{L}^{\mathrm{T}}(\hat{\rho})\,\hat{\rho} \qquad (4)$$

подобно тому, как в уравнении Больцмана интеграл столкновений выражается через искомую одночастичную функцию распределения [6]. Здесь в лиувиллиане

$$\mathcal{L}(\hat{\rho}) = \mathcal{L}_{\mathrm{E}} + \mathcal{L}_{\mathrm{r}} + \mathcal{L}_{\mathrm{d}}(\hat{\rho}) \qquad (5)$$

зависимость от $\hat{\rho}$ содержится только в последнем члене, в то время как лиувиллиан $\mathcal{L}_{\mathrm{E}}$ взаимодействия с классическим полем E в среде и лиувиллиан $\mathcal{L}_{\mathrm{r}}$ радиационного затухания являются одноатомными и не зависят от $\hat{\rho}$. При этом среднее поле, создаваемое атомом 2, включено в E, и при расчете столкновительного лиувиллиана следует учитывать только воздействие флуктуационной части его поляризации, т. е. выполнить замену

$$\hat{\sigma}^{\pm} \to \Delta\hat{\sigma}^{\pm} = \hat{\sigma}^{\pm} - <\hat{\sigma}^{\pm}>.$$

Для того чтобы получить аналитическое выражение для столкновительного лиувиллиана, рассмотрим, как и в [4], приближение «дальних» столкновений, когда экспоненту в выражении (2) можно представить с точностью до квадратичного члена степенного разложения

$$\mathcal{L}_{\mathrm{d}} = \gamma_{\mathrm{d}}\left(\Delta n_+ \mathcal{L}_+ + \Delta n_- \mathcal{L}_-\right), \qquad (6)$$

где $\Delta n_\pm = \mathrm{Tr}\,\Delta\hat{\sigma}^{\pm}\Delta\hat{\sigma}^{\mp}\hat{\rho}$ — флуктуации операторов переходов $1\to 2$ и $2\to 1$;

$$\mathcal{L}_+ = \frac{1}{2}[\hat{P}_{22}\odot + \odot\,\hat{P}_{22} - 2\hat{P}_{21}\odot\hat{P}_{12}],$$

$$\mathcal{L}_- = \frac{1}{2}[\hat{P}_{11}\odot + \odot\,\hat{P}_{11} - 2\hat{P}_{12}\odot\hat{P}_{21}]$$

— безразмерные релаксационные операторы распада $2\to 1$, $1\to 2$ соответственно, а

$$\gamma_{\mathrm{d}} = N_0\left\langle\int 2\pi a da v d\tau_0 \int\limits_0^\infty \hbar^{-2} f_{12}(0) f_{12}(\tau)\, d\tau\right\rangle_{v,\mathbf{\Omega}}$$

— скорость столкновительной релаксации при столкновении с невозбужденными атомами. Данное представление имеет смысл только при введении обрезания по прицельному параметру на масштабах, где нарушается дипольная аппроксимация $\mathbf{d}(\mathbf{r}) = \mathbf{d}\delta(\mathbf{r})$, и по скоростям (на малых скоростях), которым соответствует переход от ударного уширения, т. е. от марковской составляющей, к статическому крылу, т. е. немарковской составляющей [9]. Типичная оценка этой величины [10] выражается через скорость радиационного распада γ_0 и длину волны λ:

$$\gamma_{\mathrm{d}} = \frac{\gamma_0}{8\pi^2}N_0\lambda^3. \qquad (7)$$

Первый член оператора (6) описывает столкновение с невозбужденным 2-м атомом, который выступает как резервуар, поглощающий возбуждение 1-го атома, в то время как второй член описывает столкновение с возбужденным 2-м атомом, переводящим первый с невозбужденного уровня на возбужденный. При выводе выражения (6) использовано представление вращающихся волн с невозмущенным гамильтонианом собственной энергии атома и приближение $\hat{\sigma}^{\pm}(\tau) = \hat{\sigma}^{\pm}(0)$, что соответствует пренебрежению частотой прецессии Раби по сравнению с обратным временем пролета, т. е. в отличие от [4] эффекты преобразования релаксации внешним полем не учитываются. Флуктуации $\Delta n_\pm$ выражаются через матрицу плотности следующим образом:

$$\Delta n_+ = \rho_{11} - |\rho_{12}|^2, \quad \Delta n_- = \rho_{22} - |\rho_{12}|^2. \qquad (8)$$

В базисе операторов $\hat{I}$, $\hat{\sigma}_3$, $\hat{\sigma}_1$, $\hat{\sigma}_2$ релаксационный оператор представляется матрицей

$$L_{\mathrm{d}}(\hat{\rho}) = \gamma_{\mathrm{d}} \times$$

$$\times \begin{pmatrix} 0 & -(1-2\rho_{22}) & 0 & 0 \\ 0 & -(1-2|\rho_{12}|^2) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\dfrac{1-2|\rho_{12}|^2}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\dfrac{1-2|\rho_{12}|^2}{2} \end{pmatrix}. \qquad (9)$$

В отсутствие инверсии матрица (9) описывает распад возбужденного состояния со скоростью $\gamma_d(1-2|\rho_{12}|^2)$ при одновременной некогерентной накачке со скоростью $2\gamma_d(\rho_{22}-|\rho_{12}|^2)$, а в случае инверсии уровни 1 и 2 меняются ролями. Матрица, дополняющая (9) до полного лиувиллиана (5), имеет вид [8]

$$L_E+L_r=\begin{pmatrix} 0 & -\gamma_0 & 0 & 0 \\ 0 & -\gamma_0 & -g\sin\varphi & g\cos\varphi \\ 0 & g\sin\varphi & -\dfrac{\gamma_0}{2} & -\delta \\ 0 & -g\cos\varphi & \delta & -\dfrac{\gamma_0}{2} \end{pmatrix}, \quad (10)$$

где γ_0 — скорость радиационного распада, δ — частотная расстройка поля, $g=|\mathbf{d}\cdot\mathbf{E}|/\hbar$ — частота Раби, $\varphi=\operatorname{arctg}(\operatorname{Im}\mathbf{d}\cdot\mathbf{E}/\operatorname{Re}\mathbf{d}\cdot\mathbf{E})$, $\mathbf{E}$ — комплексная амплитуда поля. Полная эволюционная матрица имеет вид $(*)$ (см. внизу страницы).

Представляя матрицу плотности через вектор Блоха $\mathbf{s}=(w,u,v)$ в соответствии с разложением $\hat\rho=(\hat I+\mathbf{s}\cdot\hat\sigma)/2$, получаем

$$L(\mathbf{s})=\begin{pmatrix} 0 & -\nu(w) & 0 & 0 \\ 0 & -\gamma(w_t) & -g\sin\varphi & g\cos\varphi \\ 0 & g\sin\varphi & -\dfrac{\gamma(w_t)}{2}-\Gamma' & -\delta \\ 0 & -g\cos\varphi & \delta & -\dfrac{\gamma(w_t)}{2}-\Gamma' \end{pmatrix}, \quad (11)$$

где

$$\gamma(w_t)=\gamma_0+\gamma_d\left(1-\frac{w_t^2}{2}\right), \qquad \nu(w)=\gamma_0-\gamma_d w \quad (12)$$

— зависящие от состояния атома затухание и параметр накачки, $w_t^2=u^2+v^2$, а Γ' — упругая часть столкновительной дефазировки. Благодаря инвариантности рассматриваемых операторов относительно фазы поля можно далее ограничиться случаем $\varphi=0$, поскольку общий случай восстанавливается соответствующим поворотом двумерного комплексного вектора $(u,v)=w_t\exp(-i\varphi)$.

2. Исследование стационарного решения

Задача распространения лазерного поля в рассматриваемой двухуровневой среде сводится к анализу решения стационарной матричной проблемы определения нулевого собственного вектора $(1,\mathbf{s})$ матрицы, зависящей от искомого вектора:

$$(1,\mathbf{s})L(\mathbf{s})=0. \quad (13)$$

Решение этой задачи определяет стационарный вектор Блоха и соответствующую ему матрицу плотности. Из-за нелинейного характера уравнения (13) его решение не удается представить в аналитическом виде, однако это эффективно можно сделать в итерационной форме. Если зафиксировать неизвестные априори скорость радиационного рапада γ и параметр накачки ν в лиувиллиане (11), то компоненты вектора Блоха $\mathbf{s}=(w,u,v)$, удовлетворяющие уравнению (13), имеют вид

$$\begin{aligned} w&=-(4\delta^2+\gamma^2+4\gamma\Gamma'+4\Gamma'^2)\frac{\nu}{D}, \\ u&=-4\delta g\frac{\nu}{D}, \\ v&=-2g(\gamma+2\Gamma')\frac{\nu}{D}, \end{aligned} \quad (14)$$

где

$$D=4\delta^2\gamma+2g^2(\gamma+2\Gamma')+\gamma(\gamma+2\Gamma')^2.$$

Используя в качестве начальных условий набор $\mathbf{s}=(0,0,0)$, определяя с помощью выражений (14) значения релаксационных параметров (12) и используя эти параметры в уравнении Больцмана (13), после достаточного числа итераций получаем решение с наперед заданной точностью $\epsilon=|(1,\mathbf{s})L|$. Так, для достижения точности 10^{-5} требуется до 25 итераций, в зависимости от параметров задачи (в пределах тех значений, которые рассмотрены выше для иллюстрации эффектов нелинейной релаксации).

С использованием соотношений (12)–(14) рассчитаны значения вектора Блоха $\mathbf{s}$ для безразмерных расстроек $-10<\delta/\gamma_0<10$ и частот Раби $0<g/\gamma_0<5$ при фиксированных значениях скорости нерезонансной дефазировки $\Gamma'/\gamma_0=1$ и невозмущенной скорости резонансного распада $\gamma_d/\gamma_0=2$. Соответствующие значения населенности верхнего уровня $\rho_{22}=(1+w)/2$ и степени когерентности возбуждения $|\rho_{12}|^2/[\rho_{22}(1-\rho_{22})]=w_t^2/(1-w^2)$ показаны на рис. 1. Отношения скорости распада $\gamma(w)$ и параметра некогерентной накачки $\nu(w_t)$ к их невозмущенному значению $\gamma_0+\gamma_d$ показаны на рис. 2.

3. Обсуждение результатов

Как следует из рис. 2, нелинейность релаксации проявляется главным образом в зависимости параметра накачки от параметров поля. В соответствии с видом зависимости степени когерентности от поля, приведенной на рис. 1, величина когерентной части возбуждения, т.е. недиагонального элемента матрицы плотности, существенно меньше населенности верхнего уровня. Этот факт объясняет

$$L(\hat\rho)=\begin{pmatrix} 0 & -\gamma_0-\gamma_d(1-2\rho_{22}) & 0 & 0 \\ 0 & -\gamma_0-\gamma_d(1-2|\rho_{12}|^2) & -g\sin\varphi & g\cos\varphi \\ 0 & g\sin\varphi & -\dfrac{\gamma_0}{2}-\dfrac{\gamma_d}{2}(1-2|\rho_{12}|^2)-\Gamma' & -\delta \\ 0 & -g\cos\varphi & \delta & -\dfrac{\gamma_0}{2}-\dfrac{\gamma_d}{2}(1-2|\rho_{12}|^2)-\Gamma' \end{pmatrix} \quad (*)$$

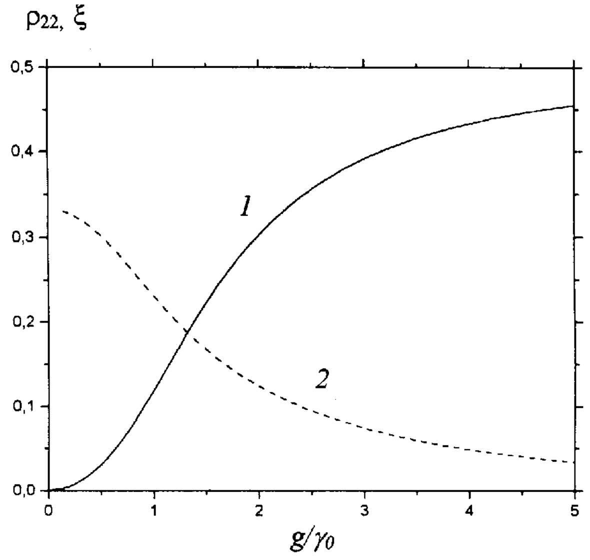

Рис. 1. Зависимость населенности возбужденного уровня (*1*) и степени когерентности атомного возбуждения (*2*) от напряженности лазерного поля (g — частота Раби, γ_0 — скорость радиационного распада)

незначительную зависимость от поля скорости радиационного распада (рис. 2, *а*), определяемую недиагональным элементом матрицы плотности, и существенно большую зависимость параметра накачки (рис. 2, *б*), определяемого населенностью верхнего уровня.

Приведенные оценки показывают, что релаксационные параметры плотной среды двухуровневых атомов существенно зависят от параметров лазерного поля, если в объеме $\sim \lambda^3$, где λ — длина волны, в среднем находится не менее одного активного атома. Изложенный метод расчета может быть полезен при исследовании конкретных эффектов распространения поля, связанных с влиянием нелинейности релаксации двухуровневых атомов на распространение лазерного излучения и флуоресценцию в плотном газе активных атомов.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант 96-03-32867) и гранта Volkswagen Stiftung (1/72944).

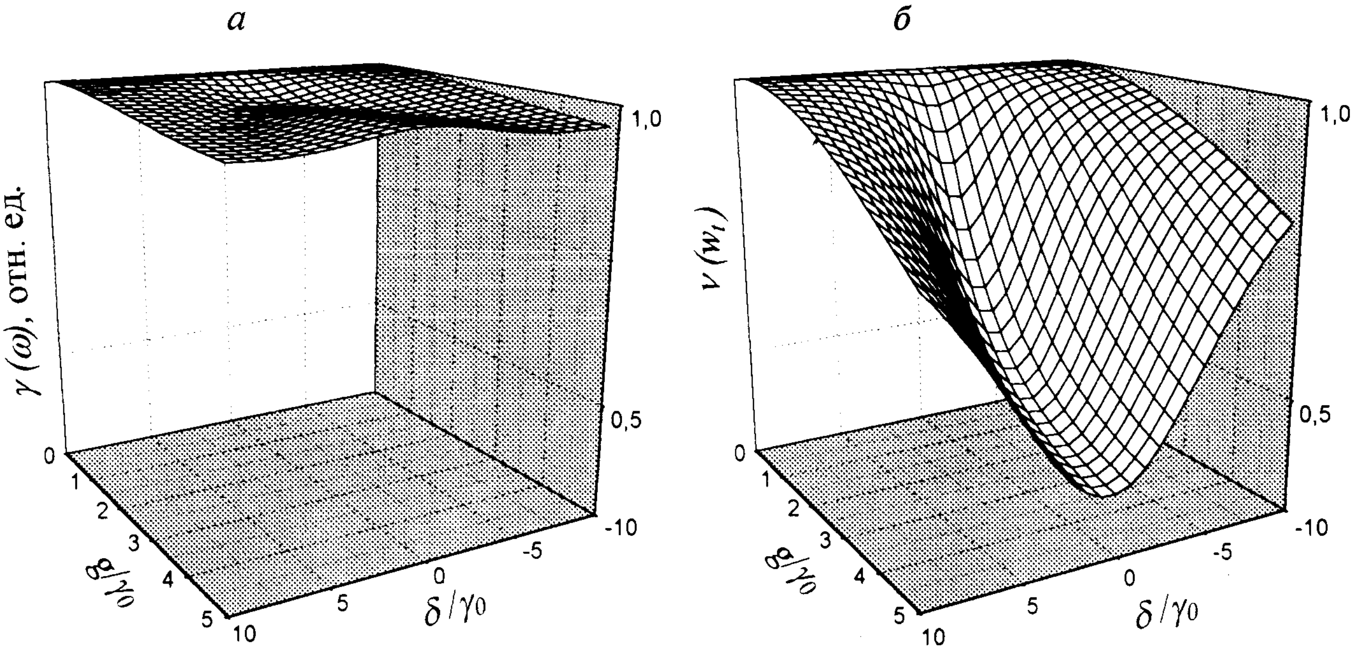

Рис. 2. Зависимость релаксационных параметров резонансного столкновительного уширения: (*а*) скорости распада возбужденного состояния $\gamma(\omega)$ и (*б*) параметра некогерентной накачки $\nu(w_t)$ от напряженности (g/γ_0) и расстройки (δ/γ_0) лазерного поля

Литература

1. *Власов А.А., Фурсов В.С.* // ЖЭТФ. 1936. **6**. С. 378.
2. *Лисица В.С., Яковленко С.И.* // ЖЭТФ. 1975. **68**. С. 479.
3. *Пестов Э.Г., Раутиан С.Г.* // ЖЭТФ. 1969. **56**. С. 901.
4. *Гришанин Б.А.* // ЖЭТФ. 1983. **85**. С. 447.
5. *Kampen H. van, Sautenkov V.A., Shalagin A.M.* et al. // Phys. Rev. 1977. **A56**. P. 3569.
6. *Климонтович Ю.Л.* Статистическая физика. М., 1982.
7. *Liu W.K., Marcus R.A.* // J. Chem. Phys. 1975. **63**. P. 272.
8. *Гришанин Б. А.* Квантовая электродинамика для радиофизиков. М., 1981.
9. *Вайнштейн Л. А., Собельман И.И., Юков Е.А.* Возбуждение атомов и уширение спектральных линий. М., 1979.
10. *Климонтович Ю. Л.* Кинетическая теория электромагнитных процессов. М., 1980.

Поступила в редакцию
09.02.98