ՀԱՅԿԱԿԱՆ ՍՍՀ ԳԻՏՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ ԱԿԱԴԵՄԻԱՅԻ ԶԵԿՈՒՅՑՆԵՐ
ДОКЛАДЫ АКАДЕМИИ НАУК АРМЯНСКОЙ ССР
LXXIX 1984 5

УДК 535.14

ФИЗИКА

Г. Ю. Крючков

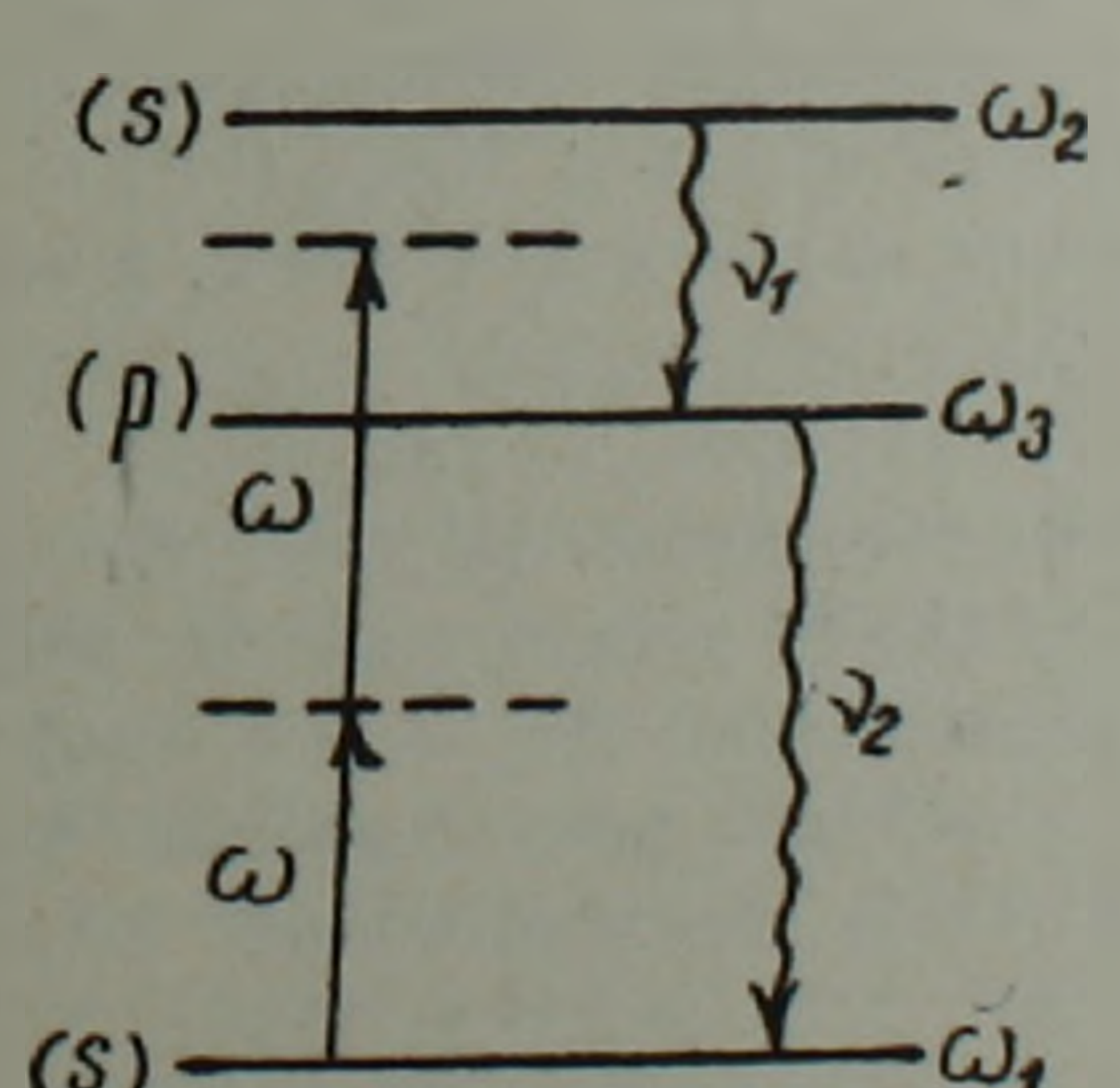
Четырехфотонное рассеяние в стационарном режиме

(Представлено академиком АН Армянской ССР М. Л. Тер-Микаеляном 20/VII 1983)

1. В последнее время исследовались процессы двухфотонного спонтанного излучения на отдельном атоме в лазерном поле. В частности, было показано, что явление одновременного излучения двух фотонов в резонансном поле является процессом четырехфотонного рассеяния. Два лазерных фотона с частотами ω рассеиваются в два других фотона с частотами ν_1, ν_2, удовлетворяющими соотношению $\nu_1+\nu_2=2\omega$.

Двухфотонное спектральное распределение для подобных процессов получено для случая малых времен наблюдения $t\ll\gamma^{-1}$ (γ — спонтанные ширины) на двух- и трехуровневой атомной системах в работах [1] и в стационарном режиме $t\gg\gamma^{-1}$ для двухуровневой системы в работе [2].

2. В настоящей статье рассматривается процесс двухфотонного излучения трехуровневой атомной системой (см. рисунок, где слева указаны четности атомных состояний) при наличии двухфотонного резонанса между уровнями $\omega_{21}=\omega_2-\omega_1$, т. е. при $\omega_{21}-2\omega\ll\omega_{21}$.



Предполагается, что имеют место условия когерентного, а не ступенчатого двухфотонного возбуждения уровня ω_2 с ее последующим двухфотонным распадом через промежуточный уровень ω_3. При этом амплитуда возбуждения не содержит спонтанных ширин промежуточных уровней, через которые осуществляется двухфотонный резонанс, а определяется двухфотонным матричным элементом $V_{ij}^{(2)}=$

$= \sum_{k}^{l} V_{ik} V_{kj}/4(\omega_{kj} - \omega)$, где V_{ik}—однофотонные матричные элементы перехода между атомными состояниями $|\varphi_i\rangle$.

Цель настоящей работы состоит в получении двухфотонного спектрального распределения в стационарном режиме $t \gg \gamma_{23}^{-1}, \gamma_{31}^{-1}$ при последовательном квантово-электродинамическом учете спонтанных ширин атомных уровней и эффектов влияния поля на них. Исследуется физически интересный случай „сильных" полей, для которых энергия взаимодействия атома с полем намного превышает ширины γ_{23}, γ_{31}.

Удобным подходом для решения подобных задач является аппарат матрицы плотности в представлении квазиэнергетических состояний (КЭС). Его суть состоит в следующем. При пренебрежении спонтанными переходами, когда $t \ll \gamma^{-1}$, динамика системы описывается КЭС, учитывающими взаимодействие с лазерным полем. В частности, для рассматриваемой системы они имеют следующий вид ($\varepsilon > 0$):

$$\psi_1 = e^{-iE_1 t}(\cos\theta\, \varphi_1 - s \sin\theta e^{-2i\omega t} \varphi_2),$$
$$\psi_2 = e^{-iE_2 t}(s^* \sin\theta e^{2i\omega t} \varphi_1 + \cos\theta\, \varphi_2), \qquad (1)$$
$$\psi_3 = e^{-i\omega_3 t}\, \varphi_3$$

с квазиэнергиями: $E_1 = \tilde{\omega}_1 + \frac{\varepsilon}{2} - \Omega$, $E_2 = \tilde{\omega}_2 - \frac{\varepsilon}{2} + \Omega$,

$$\text{где } \cos\theta = \sqrt{\frac{1}{2}\left(1 + \frac{\varepsilon}{2\Omega}\right)}, \qquad \sin\theta = \sqrt{\frac{1}{2}\left(1 - \frac{\varepsilon}{2\Omega}\right)},$$

$$\varepsilon = \tilde{\omega}_{21} - 2\omega, \quad 2\Omega = \sqrt{\varepsilon^2 + |V_{21}^{(2)}|^2}, \quad s = V_{21}/|V_{21}|$$

и величины $\tilde{\omega}_i = \omega_i + V_{ii}^{(2)}$—содержат штарковские сдвиги уровней.

Область $t \geq \gamma^{-1}$ описывается уравнениями для матрицы плотности, которые записываются в базисе КЭС ([3-5]) и учитывают взаимодействие с квантованным полем излучения и, в частности, спонтанные переходы между КЭС.

3. Амплитуда двухфотонного излучения выражается через фотонные операторы уничтожения $A_{\nu_1\nu_2}(t+\tau, t) \sim \langle a_{\nu_1}(t+\tau) a_{\nu_2}(t) \rangle$.

С помощью стандартной процедуры (см. например ([6])) в рамках формализма матрицы эволюции $S(t) = S(t, -\infty)$ квантовой электродинамики с внешним полем в представлении Фарри для амплитуды одновременного (при $\tau = 0$) двухфотонного излучения получаем (см. также работы ([5])):

$$A_{\nu_1\nu_2}(t) = 2\sqrt{\nu_1\nu_2} \sum_{ij} g_{ij}(\nu_1, \nu_2) + (\nu_1, \vec{e}_1) \rightleftarrows (\nu_2, \vec{e}_2),$$
$$(2)$$
$$g_{ij}(\nu_1, \nu_2) = \int_{-\infty}^{t} dt_2 \int_{t_2}^{t} dt_1 e^{i(\nu_1 t_1 + \nu_2 t_2)} \langle \psi_0 | (\vec{D}_{ij}(t_1)\vec{e}_1)(\vec{D}(t_2)\vec{e}_2) | \psi_0 \rangle.$$

Величина

$$\vec{D}(t)=\overset{+}{S}(t)\vec{d}^{(-)}S(t)=\sum_{ij}\vec{D}_{ij}(t), \tag{3}$$

$$\vec{D}_{ij}(t)=\rho_{ij}(t)\int d^3r\psi_i^*(r,t)\vec{d}^{(-)}\psi_j(r,t)$$

выражена через элементы матрицы плотности КЭС $\rho_{ij}(t)=\overset{+}{S}(t)|i\rangle\langle j|S(t)$ и отрицательно-частотные части матричных элементов оператора d по КЭС. Усреднение идет по начальному КЭС и вакууму фотонов излучения.

Воспользуемся схемой вычисления составляющих g_{ij}, аналогичной предложеной в работе [3] для вычисления спектра резонансной флуоресценции. Она основана на теореме регрессии, согласно которой корреляционная функция от произведения операторов дипольного момента в выражении (2) при $t_1>t_2$ удовлетворяет такому же уравнению, что и среднее значение $\langle\vec{D}_{ij}(t_1)\rangle$. Для „сильных" полей при $i\neq j$ эта величина удовлетворяет уравнению (для конкретного случая они выписаны в пункте (4)):

$$\frac{d}{dt}\langle\vec{D}_{ij}(t)\rangle=i\Omega_{ij}\langle\vec{D}_{ij}(t)\rangle. \tag{4}$$

Для составляющих $i\neq j$ при $t\gg\gamma^{-1}$ эта схема вычислений приводит к следующему результату:

$$g_{ij}(\nu_1,\nu_2)=\pi i\sum_{q=-\infty}^{\infty}\delta(\nu_1+\nu_2-q\omega)g_{ij}^{(q)}(\nu_1,\nu_2),$$

$$g_{ij}^{(q)}(\nu_1,\nu_2)=\rho_{ii}^{(0)}R_{ij,nm}^{(q)}e_n(1)e_m(2)/(\nu_1+\Omega_{ij}), \tag{5}$$

где величина

$$R_{ij,nm}^{(q)}=\frac{\omega}{2\pi}\int_{-\pi/\omega}^{\pi/\omega}dte^{iq\omega t}\int d^3r_1d^3r_2$$

$$(\psi_i^*(r_1,t)d_n^{(-)}\psi_j(r,t))(\psi_j^*(r_2,t)d_m^{(-)}\psi_i(r_2,t))$$

выражена через квазиэнергетические волновые функции, и величины $\rho_{ii}^{(0)}=\langle\rho_{ii}(\infty)\rangle$ являются стационарными населенностями КЭС.

Отметим, что при ее получении использованы условие адиабатического выключения взаимодействия с полем излучения при $t\to-\infty$ и свойство временной периодичности КЭС с периодом $2\pi/\omega$.

Выражение (5), (6) справедливо для произвольной многоуровневой атомной системы в „сильном" монохроматическом поле, и ее получение составляло другой аспект настоящей работы. Оно состоит из амплитуд с законами сохранения $q\omega=\nu_1+\nu_2$, которые указывают на наличие спектральных корреляций фотонов при $q+2$-фотонном рассеянии*.

---

* Вычисление диагональных составляющих амплитуды проводится аналогичным образом с помощью системы уравнений для величин D_{ii}.

4. Применительно к рассматриваемой трехуровневой системе, используя КЭС (1), разложение (3) и выражения (6), можно убедиться, что полная амплитуда (2) имеет лишь недиагональные составляющие g_{13}, g_{31}, g_{23}, g_{32}, соответствующие значению $q=2$, т. е. процессу четырехфотонного рассеяния.

Для вычисления величин $\rho_{ii}^{(0)}$, Ω_{ij} используем уравнения в форме, приведенной в работах (5). Для произвольного знака ε и с точностью до членов порядка γ_{23}/Ω, γ_{31}/Ω для средних значений $\bar{\rho}_{ij}(t) = \langle\rho_{ij}(t)\rangle$ получаем:

$$2\dot{\bar{\rho}}_{13}(t) = -\Gamma_1\bar{\rho}_{13}(t), \quad 2\dot{\bar{\rho}}_{23}(t) = -\Gamma_2\bar{\rho}_{23}(t).$$

$$\Gamma_1 = \gamma_{31} + n_2\gamma_{23}, \quad \Gamma_2 = \gamma_{31} + n_1\gamma_{23}, \tag{7}$$

$$\dot{\bar{\rho}}_{11}(t) = -n_2\gamma_{23}\bar{\rho}_{11}(t) + n_1\gamma_{31}\bar{\rho}_{33}(t),$$

$$\dot{\bar{\rho}}_{22}(t) = -n_1\gamma_{23}\bar{\rho}_{22}(t) + n_2\gamma_{31}\bar{\rho}_{33}(t), \tag{8}$$

$$\bar{\rho}_{33}(t) = 1 - \bar{\rho}_{11}(t) - \bar{\rho}_{22}(t),$$

где $n_{1,2} = \frac{1}{2}(1 \pm |\varepsilon|/2\Omega)$ — населенности атомных состояний в КЭС.

Комбинируя уравнения (7) с выражениями для матричных элементов $\langle\psi_i|d^{(-)}|\psi_j\rangle$, для величин Ω_{ij} в уравнении (4), определяющих спектр излучения, получаем:

$$\Omega_{13} = \tilde{\omega}_{13} + \frac{\varepsilon}{2}\left(1 - \frac{2\Omega}{|\varepsilon|}\right) + \frac{i}{2}\Gamma_1, \quad \Omega_{31} = \tilde{\omega}_{32} + \frac{\varepsilon}{2}\left(1 + \frac{2\Omega}{|\varepsilon|}\right) + \frac{i}{2}\Gamma_1,$$

$$\Omega_{23} = \tilde{\omega}_{13} + \frac{\varepsilon}{2}\left(1 + \frac{2\Omega}{|\varepsilon|}\right) + \frac{i}{2}\Gamma_2, \quad \Omega_{32} = \tilde{\omega}_{32} + \frac{\varepsilon}{2}\left(1 - \frac{2\Omega}{|\varepsilon|}\right) + \frac{i}{2}\Gamma_2. \tag{9}$$

Для больших времен $t \gg \gamma_{31}^{-1}$, γ_{23}^{-1} система уравнений (8) переходит в уравнения баланса и приводит к следующим выражениям для стационарных населенностей КЭС:

$$\rho_{11}^{(0)} = \frac{n_1^2}{n_2^2}\rho_{22}^{(0)} = \frac{n_1\gamma_{31}}{n_2\gamma_{23} + \left(n_1 + \frac{n_2^2}{n_1}\right)\gamma_{31}},$$

$$\rho_{33}^{(0)} = \frac{n_2\gamma_{23}}{n_2\gamma_{23} + \left(n_1 + \frac{n_2^2}{n_1}\right)\gamma_{31}}. \tag{10}$$

В итоге для амплитуды процесса двухфотонного излучения получаем выражение, симметричное по частотам ν_1 и ν_2:

$$A_{\nu_1\nu_2} = 2\pi i\sqrt{\nu_1\nu_2}\,\delta(2\omega - \nu_1 - \nu_2)A^{(2)}(\nu_1, \nu_2), \tag{11}$$

$$A^{(2)}(\nu_1, \nu_2) = \frac{V_{12}^{(2)}}{4\Omega}\left\{(\vec{d}_{13}\vec{e}_1)(\vec{d}_{32}\vec{e}_2)\left[\frac{\rho_{22}^{(0)}}{\nu_1 + \Omega_{23}} - \right.\right.$$

$$\left.\left. - \frac{\rho_{11}^{(0)}}{\nu_1 + \Omega_{13}} + \rho_{33}^{(0)}\left(\frac{1}{\nu_1 + \Omega_{13}^*} - \frac{1}{\nu_1 + \Omega_{23}^*}\right)\right] + (\vec{e}_1, \nu_1) \rightleftarrows (\vec{e}_2, \nu_2)\right\},$$

которое приводит к соответствующей дифференциальной вероятности, отнесенной к единице времени

$$dW_{2\gamma}=\delta(2\omega-\nu_1-\nu_2)|A^{(2)}|^2\frac{\nu_1^2\nu_2^2 d\nu_1 d\nu_2}{(2\pi)^3}do_1do_2.$$

Отметим, что при получении выражения (11) были использованы соотношения: $\nu_2+\Omega_{32}=-(\nu_1+\Omega^*_{23})$, $\nu_2+\Omega_{31}=-(\nu_1+\Omega^*_{13})$.

Спектр двухфотонного излучения определяется спонтанными переходами между КЭС (1). Для больших расстроек резонанса γ_{31}, $\gamma_{23}\ll V^{(2)}\ll\varepsilon$ имеем: $\Omega_{23}=\omega_{23}-2\omega+\frac{i}{2}(\gamma_{31}+\gamma_{23})$, $\Omega_{13}=\omega_{13}+\frac{i}{2}\gamma_{31}$, т. е. частоты пары коррелированных фотонов лежат в окрестности пиков: $(\nu_1=2\omega-\omega_{23},\ \nu_2=\omega_{23})$; $(\nu_1=\omega_{31},\ \nu_2=2\omega-\omega_{31})$, другие пики соответствуют перестановке фотонов: $(\nu_1=\omega_{23},\ \nu_2=2\omega-\omega_{23})$; $(\nu_1=2\omega-\omega_{31},\ \nu_2=\omega_{31})$.

Автор выражает благодарность М. Л. Тер-Микаеляну за многочисленные полезные обсуждения.

Институт физических исследований
Академии наук Армянской ССР

Գ. ՅՈՒ. ԿՐՅՈՒՉԿՈՎ

Քառաֆոտոն ցրումը ստացիոնար ռեժիմում

Հետազոտվում է եռմակարդակ ատոմային սիստեմի կողմից միաժամանակ երկֆոտոն առաքման պրոցեսը լազերային դաշտի ազդեցությամբ: Քվանտային էլեկտրադինամիկայի շրջանակներում հաշված է ստացիոնար ռեժիմում երկֆոտոն սպեկտրալ բաշխումը ատոմային մակարդակների միջև երկֆոտոն ռեզոնանսի դեպքում:

ЛИТЕРАТУРА — ԳՐԱԿԱՆՈՒԹՅՈՒՆ

[1] *М. Л. Тер-Микаелян, В. О. Чалтыкян,* ДАН АрмССР, т. 75, № 4 (1982); *М. Л. Тер-Микаелян, В. Е. Мкртчян, В. О. Чалтыкян,* ДАН АрмССР, т. 77, № 4 (1983). [2] *P. A. Apanasevich, S. Ia. Kilin,* Phys. Lett., v. 62A, 83 (1977). [3] *C. Cohen-Tannoudji, S. Reynaud,* J. Phys., v. A10, 345 (1977). [4] *А. О. Меликян, М. Л. Тер-Микаелян,* Изв. АН СССР, Сер. физическая, т. 46, 1004 (1982). [5] *Г. Ю. Крючков,* ЖЭТФ, т. 83, 1992, (1982); Препринт ИФИ 83-104, Аштарак (1983). [6] *С. Швебер,* Введение в релятивистскую квантовую теорию поля, ИЛ, М., 1963.