ՀԱՅԿԱԿԱՆ ՍՍՀ ԳԻՏՈՒԹՅՈՒՆՆԵՐԻ ԱԿԱԴԵՄԻԱՅԻ ԶԵԿՈՒՅՑՆԵՐ
ДОКЛАДЫ АКАДЕМИИ НАУК АРМЯНСКОЙ ССР

LXXV 1982 4

УДК 539.1

ФИЗИКА

Академик АН Армянской ССР **М. Л. Тер-Микаелян,**
В. О. Чалтыкян

Двухфотонный распад трехуровневого атома в поле двух сильных излучений, резонансных атомным переходам

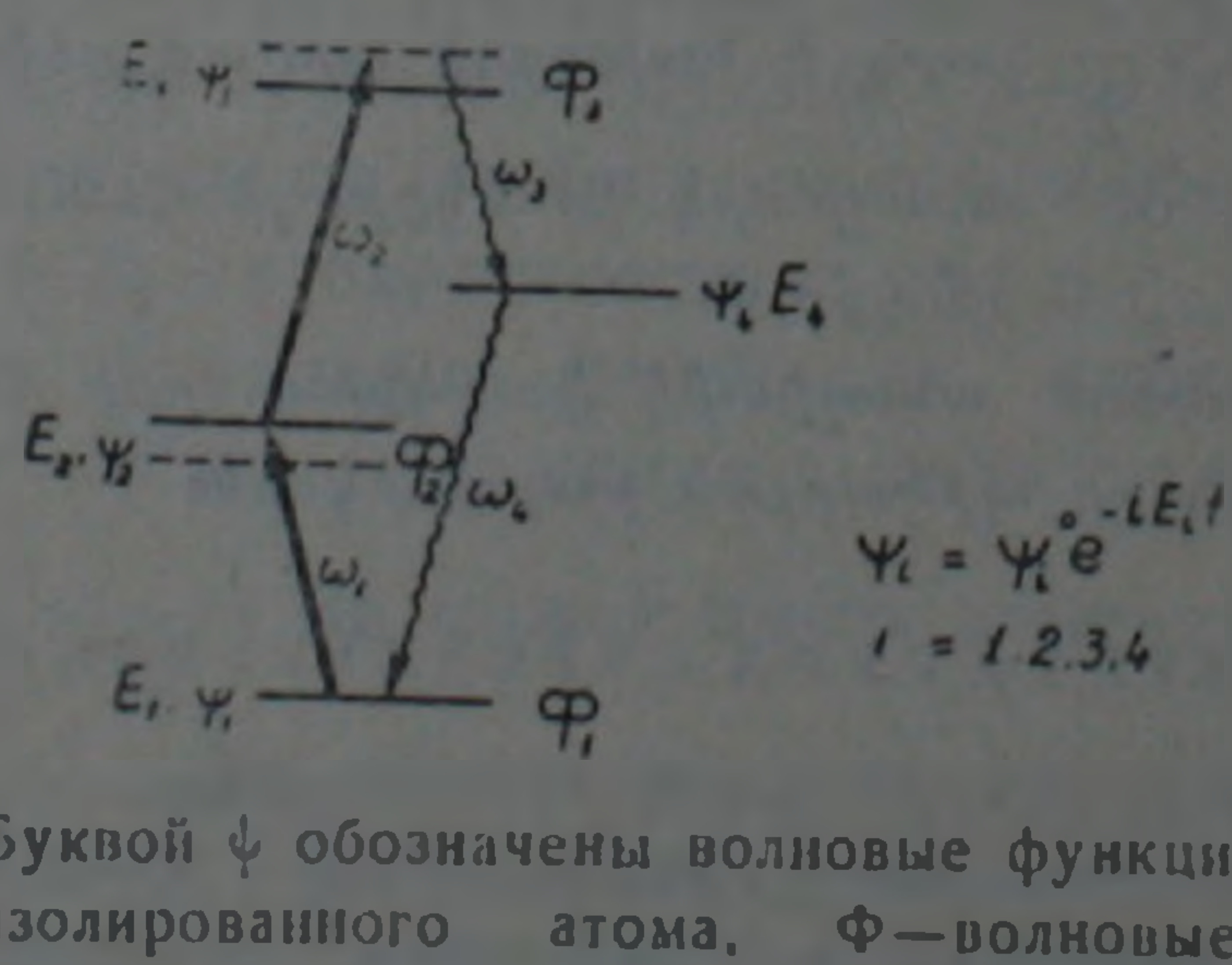
(Представлено 20/II 1982)

Трехуровневая модель атома, взаимодействующего с резонансным монохроматическим излучением, интенсивно изучалась начиная с 60-х гг. в связи с развитием лазеров (см. например ([1–9])).

В последних работах ([6–9]) получены квазиэнергетические волновые функции трехуровневого атома в поле одного или двух излучений, резонансных атомным переходам, изучены спектры квазиэнергий, динамические населенности, а также процессы излучения и поглощения одного фотона при переходах системы „атом + поле" между квазиэнергетическими состояниями.

В указанных работах процессы излучения или поглощения рассматривались в первом порядке теории возмущений по излученному или поглощенному (слабому) полю, в то время как сильное резонансное поле учитывалось во всех порядках теории возмущений в резонансном приближении.

Однако в реальных атомных системах возбужденное квазиэнергетическое состояние Φ_3 (см. рисунок) может распадаться через промежуточные уровни (уровни 2, 4 на рисунке) с излучением двух и более фотонов. И хотя вероятность одновременного излучения двух фотонов



Буквой ψ обозначены волновые функции изолированного атома, Φ—волновые функции квазиэнергетических состояний в поле излучения на частотах ω_1 и ω_2

ω_3 и ω_4, рассчитанная ([10]) по теории возмущений, мала по сравнению с вероятностью излучения одного фотона, она может стать существенной в резонансных условиях, особенно в случае запрета на дипольный электрический переход $3 \to 1$. Тогда становится существенным четырехфотонный процесс (при переходе $\Phi_1 \to \Phi_1$, см. ниже), в котором поглощаются фотоны ω_1 и ω_2 и излучаются фотоны ω_3 и ω_4. Как увидим ниже, в условиях, когда неприменима теория возмущений по сильным полям ω_1 и ω_2, вероятность указанного четырехфотонного процесса становится сравнимой с вероятностью двухфотонного распада возбужденного состояния (уровень 3).

Изучение процессов вида $\omega_1 + \omega_2 \to \omega_3 + \omega_4$ на отдельном атоме в сильном резонансном поле, когда обычная теория возмущений становится неприменимой, представляет практический интерес, поскольку они являются микроскопическим аналогом четырехволновых процессов в нелинейных средах, хорошо изученных в целом ряде работ (на основе уравнений распространения волн в среде с разложением поляризуемости среды в ряд по степеням напряженности волны накачки, см. например ([11]), либо без разложения в резонансном случае ([12])), и, кроме того, дают возможность отвлечься от эффектов накопления в среде, что позволяет рассмотрение более тонких эффектов квантовой электродинамики.

Рассмотрим четырехуровневую атомную систему (рисунок), находящуюся в поле двух монохроматических излучений на частотах ω_1 и ω_2, близких к резонансу со смежными переходами $1 \to 2$ и $2 \to 3$ соответственно (четвертый уровень — нерезонансный). Волновые функции стационарных состояний системы „атом$+n_1$ фотонов частоты $\omega_1 + n_2$ фотонов частоты ω_2“ можно легко получить, используя методику, развитую в ([6]) (ср. с квазиэнергетическими функциями, полученными в ([7])):

$$\Phi_1(n_1, n_2, n_3, \ldots) = [C_1\psi_1^0|n_1, n_2, \ldots\rangle + B_1\psi_2^0|n_1-1, n_2, \ldots\rangle + \tag{1}$$

$$+D_1\psi_3^0|n_1-1, n_2-1, \ldots\rangle]\exp\left\{-it\left(\lambda_1 + E_1 + \sum_{i=1,2,\ldots} n_i\omega_i\right)\right\} \equiv \Phi_1^0 e^{-itE_1(n_1,n_2,\ldots)},$$

где многоточие в фотонных волновых функциях $|n_1, n_2, \ldots\rangle$ означает числа фотонов нерезонансных частот. Функции Φ_2 и Φ_3 получаются из (1) заменой индексов у C_1, D_1, B_1, λ_1 на 2 и 3 соответственно и заменой $n_1 \to n_1 + 1$ для Φ_2 и $n_1 \to n_1 + 1$, $n_2 \to n_2 + 1$ для Φ_3. Волновая функция четвертого уровня не связывается с остальными. При выключении взаимодействия коэффициенты C_1, B_2, D_3 стремятся к единице, остальные—к нулю, а величины λ_i ($i = 1, 2, 3$) являются корнями алгебраического кубического уравнения и имеют в общем случае громоздкий вид, поэтому мы приведем выражения для них в предельных случаях применимости теории возмущений и в случае сильных резонансных полей. Именно, при условии $|W_{12}|^2/\hbar^2\varepsilon_{21}^2 \ll 1$, $|W_{32}|^2/\hbar^2\varepsilon_{32}^2 \ll 1$, $|W_{32}|^2/\hbar^2\varepsilon_{21}\varepsilon_{31} \ll 1$, где W_{12}, W_{32}—матричные элементы дипольного взаимодействия излучений накачки с атомом, а $\varepsilon_{21} = E_2 - E_1 - \omega_1$, $\varepsilon_{32} = E_3 - E_2 - \omega_2$ и $\varepsilon_{31} = E_3 - E_1 - \omega_1 - \omega_2$—расстройки соответственно однофотонных и двухфотонного резонансов, имеем

$$\lambda_1 \simeq -\frac{|W_{12}|^2}{\hbar^2\varepsilon_{21}}, \quad \lambda_2 \simeq \varepsilon_{21} + \frac{|W_{12}|^2}{\hbar^2\varepsilon_{21}} - \frac{|W_{32}|^2}{\hbar^2\varepsilon_{32}}, \quad \lambda_3 \simeq \varepsilon_{31} + \frac{|W_{32}|^2}{\hbar^2\varepsilon_{32}}. \tag{2}$$

В обратном предельном случае, когда выполняются соотношения $(|W_{12}|^2+|W_{32}|^2)/\hbar^2\varepsilon_{21}^2 \gg 1$ и $(|W_{12}|^2+|W_{32}|^2)/\hbar^2\varepsilon_{31}^2 \gg 1$, выражения для $\lambda_{1,2,3}$ принимают вид

$$\lambda_{1,2} \simeq \pm \frac{1}{\hbar}\sqrt{|W_{12}|^2+|W_{32}|^2} + \frac{\varepsilon_{21}+\varepsilon_{31}}{2} - \frac{\varepsilon_{31}}{2}\frac{|W_{12}|^2}{|W_{12}|^2+|W_{32}|^2},$$

$$\lambda_3 \simeq \varepsilon_{31}\frac{|W_{12}|^2}{|W_{12}|^2+|W_{32}|^2}. \tag{3}$$

Коэффициенты C_i, B_i, D_i ($i=1, 2, 3$) в функциях $\Phi_{1,2,3}$ определяются с помощью величин λ_i

$$B_i = C_i\frac{\hbar\lambda_i}{W_{12}}, \qquad D_i = C_i\frac{\lambda_i}{W_{12}}\frac{W_{32}}{\lambda_i-\varepsilon_{31}} \tag{4}$$

и условий нормировки функций $\Phi_{1,2,3}$.

Взаимодействие системы с остальными модами квантованного поля излучения учтем во втором порядке теории возмущений в дипольном приближении

$$V = -\vec{d}\cdot i(2\pi\hbar/v)^{1/2}\sum_{\kappa\neq 1,2}\omega_\kappa^{1/2}(\hat{c}_\kappa\vec{e}_\kappa - \hat{c}_\kappa^+\vec{e}_\kappa^*) \tag{5}$$

(индексы k и λ у операторов рождения и уничтожения $\hat{c}_\kappa^+$, $\hat{c}_\kappa$ и у ортов поляризации $\vec{e}_\kappa$ для краткости опущены). Поскольку функции (1) описывают стационарные состояния, а оператор возмущения в представлении (5) не зависит явно от времени, то формально можно воспользоваться стационарной теорией возмущений и записать поправку второго порядка ([13]) к волновой функции $\Phi_1(n_1, n_2, n_3, n_4)$. Оставляя в этой поправке только те слагаемые, которые содержат функцию Φ_1 с набором чисел фотонов n_1-1, n_2-1, n_3+1, n_4+1, можно считать квадрат модуля коэффициента при этой функции вероятностью перехода системы „атом$+n_1$ фотонов ω_1+n_2 фотонов ω_2" из состояния $\Phi_1(n_1, n_2, n_3, n_4)$ в состояние $\Phi_1(n_1-1, n_2-1, n_3+1, n_4+1)$. Тогда получим

$$w_{\text{ст}} = \frac{(n_3+1)(n_4+1)}{\hbar^4(\omega_1+\omega_2-\omega_3-\omega_4)^2}\left|\sum_{i=1}^{4}V_i^2\left[|B_1|^2C_i^*D_i\left(\frac{1}{\omega_1-\omega_3+\lambda_1-\lambda_i}+\frac{1}{\omega_1-\omega_4+\lambda_1-\lambda_i}\right)+\right.\right.$$

$$\left.\left.+|B_i|^2C_1^*D_1\left(\frac{1}{\omega_2-\omega_3+\lambda_1-\lambda_i}+\frac{1}{\omega_2-\omega_4+\lambda_1-\lambda_i}\right)\right]\right|^2. \tag{6}$$

В формуле (6) введены обозначения $C_4=D_4=0$, $B_4=1$, $\lambda_4=E_4-E_1-\omega_1$,

$$V_1^2 = V_2^2 = V_3^2 = \frac{2\pi\hbar}{v}(\omega_2\omega_4)^{1/2}(\vec{d}_{12}\vec{e}_3^*)(\vec{d}_{23}\vec{e}_4^*), \quad V_4^2 = \frac{2\pi\hbar}{v}(\omega_3\omega_4)^{1/2}(\vec{d}_{14}\vec{e}_3^*)(\vec{d}_{43}\vec{e}_4^*).$$

Формула (6) есть вероятность стационарного состояния Φ_1, в котором отсутствует по одному фотону резонансных частот ω_1 и ω_2, а числа фотонов на частотах ω_3 и ω_4 увеличены на единицу.

Значения частот ω_4, при которых вероятность (6) резонансно возрастает (в этой области частот теория возмущений неприменима), в пределе теории возмущений по полям накачки имеют вид

$$\omega_4 \approx \omega_{1,2}; \quad \omega_4 \approx E_{2,4} - E_1; \quad \omega_4 \approx E_2 - E_1 - \omega_1 + \omega_2; \quad \omega_4 \approx E_3 - E_1 - \omega_{1,2} \tag{7}$$

и соответствуют излучению на частотах накачки ($\omega_{1,2}$), на частотах атомных переходов ($E_2 - E_1$, $E_4 - E_1$) и комбинационному рассеянию. При этом знаменатель перед знаком модуля выражает закон сохранения энергии, определяя частоту ω_3 для каждого значения ω_4.

Рассмотрим для примера излучение первой из комбинационных частот в (7). Вероятность перехода $\Phi_1 \to \Phi_1$ с преобразованием двух фотонов ω_1 и ω_2 в два других $\omega_4 \simeq E_2 - E_1 - \omega_1 + \omega_2$, $\omega_3 \simeq 2\omega_1 - E_2 + E_1$ пропорциональна величине $|B_1|^4 \, |C_2|^2 \, |D_2|^2$. Последняя в приближении (2) равна $\| W_{12}|^2 W_{12} W_{32} \hbar^{-4} \varepsilon_{21}^{-3} \varepsilon_{32}^{-1}|^2 \ll 1$, т. е. рассматриваемая вероятность при условии применимости теории возмущений по полям накачки является величиной третьего порядка малости по сравнению с вероятностью ([10]) распада третьего уровня, выражающейся множителем $|(\vec{d}_{12}\vec{e}_3^{\,*})(\vec{d}_{23}\vec{e}_4^{\,*}) \hbar^{-2} (\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 - \omega_4)^{-1} (\omega_4 - \omega_2 - \varepsilon_{21})^{-1}|^2$ в ([6]). В обратном предельном случае (3) сильных резонансных полей накачки величина $|B_1|^4 \, |C_2|^2 \, |D_2|^2$ не является малой и вероятнотть перехода имеет порядок величины вероятности двухфотонного распада третьего уровня. В этом же предельном случае частоты (7) имеют вид соответственно

$$\omega_4 \approx \omega_{1,2}; \quad \omega_4 \approx \omega_1 - 2\delta; \quad \omega_4 \approx E_4 - E_1 - \delta;$$

$$\omega_4 \approx \omega_2 - 2\delta; \quad \omega_4 \approx \omega_{2,1} - \delta; \quad \delta \equiv \frac{1}{\hbar} (|W_{12}|^2 + |W_{32}|^2)^{1/2}. \tag{8}$$

Отметим, что спектр, подобный (7), (8), возникает и при однофотонном излучении трехуровневой системы в двух резонансных полях (см. ([7])).

Рассмотрим теперь те же процессы по нестационарной теории возмущений, дающей возможность изучения различных случаев длительности возмущения по сравнению с обратными расстройками резонансов системы. Для этого предположим, что возмущение (5) включается в некоторый момент времени t_0, и рассмотрим вероятность перехода $\Phi_j(n_1, n_2, \ldots) \to \Phi_l(m_1, m_2, \ldots)$ под влиянием этого возмущения. Волновую функцию возмущенной системы будем искать в виде

$$\Psi = \sum_{l, n_1, n_2, \ldots} A_l(n_1, n_2, \ldots) \Phi_l(n_1, n_2, \ldots), \tag{9}$$

где коэффициенты A_l определяются уравнением Шредингера и начальными условиями, которые напишем в виде

$$A_l^{(0)}(n_1, n_2, \ldots) = \delta_{lp} \delta_{n_1 l_1} \delta_{n_2 l_2} \ldots \tag{10}$$

Вероятности интересующих нас процессов второго порядка получим, находя вторую итерацию уравнения Шредингера

$$A_j^{(2)}(m_1, m_2, \ldots) = \sum_{l, n_1, n_2, \ldots} \frac{V_{j m_1 m_2 \ldots l n_1 n_2 \ldots} V_{l n_1 n_2 \ldots p l_1 l_2 \ldots}}{\hbar [E_l(n_1 n_2 \ldots) - E_p(l_1 l_2 \ldots)]} F_{l n_1 n_2 \ldots}(t), \tag{11}$$

где $V \ldots$ суть матричные элементы оператора (5) по функциям (1), а функция времени $F_{l n_1 n_2 \ldots}$ определяется выражением

$$F_{ln_1n_2\ldots}(t) = \frac{i}{\hbar}\int\limits_{t_0}^{t} e^{it'[E_j(m_1m_2\ldots)-E_p(l_1l_2\ldots)]}[1 - e^{-i(t_0-t')[E_p(l_1l_2\ldots)-E_l(n_1n_2\ldots)]}]\,dt', \quad (12)$$

из которого видно, что случай строгого резонанса с промежуточным состоянием $E_p(l_1l_2\ldots) = E_l(n_1n_2\ldots)$ требует аккуратного рассмотрения. Если считать длительность T импульса возмущения удовлетворяющей условию $T(E_p(l_1\ldots) - E_l(n_1\ldots)) \gg 1$, то для времен, намного превышающих величину $\dfrac{1}{E_j(m_1\ldots) - E_p(l_1\ldots)}$, имеем для $F_{ln_1n_2\ldots}(t)$ обычное значение

$$|F_{ln_1n_2\ldots}(t)|^2 = (t - t_0)\frac{2\pi}{\hbar^2}\delta(E_j(m_1m_2\ldots) - E_p(l_1l_2\ldots)), \quad (13)$$

позволяющее ввести вероятность перехода $\Phi_p(l_1l_2\ldots) \to \Phi_j(m_1m_2\ldots)$ в единицу времени, равную

$$w = \frac{2\pi}{\hbar^4}\left|\sum_{l,n_1,n_2,\ldots}\frac{V_{jm_1\ldots ln_1\ldots}V_{ln_1\ldots pl_1\ldots}}{E_l(n_1,\ldots) - E_j(m_1,\ldots)}\right|^2\delta(E_j(m_1\ldots) - E_p(l_1\ldots)). \quad (14)$$

Для получения вероятности излучения двух фотонов ω_3 и ω_4 в соответствующих интервалах частот нужно выражение (14) умножить на плотность конечных состояний.

Если длительность импульса удовлетворяет обратному условию $T(E_p(l_1\ldots) - E_l(n_1\ldots)) \ll 1$, то выражение (11) можно записать в виде

$$|A_j^{(2)}(m_1m_2\ldots)|^2 = \frac{1}{\hbar^4}\left|\sum_{l,n_1,n_2,\ldots}V_{jm_1\ldots ln_1\ldots}V_{ln_1\ldots pl_1\ldots}\right|^2 \times$$
$$\times\left|\int\limits_0^{t-t_0} e^{it'[E_j(m_1\ldots)-E_p(l_1\ldots)]t'}dt'\right|^2, \quad (15)$$

где особенность при точном промежуточном резонансе уже отсутствует.

Применим теперь формулу (14) к переходу $\Phi_1(l_1, l_2, l_3, l_4\ldots) \to \Phi_1(l_1-1, l_2-1, l_3+1, l_4+1)$, описывающему четырехфотонный процесс, и оставим для примера из суммы по промежуточным состояниям член, соответствующий $l = 4$. Тогда после вычисления матричных элементов $V\ldots$ и умножения на плотность конечных состояний фотонов ω_3 и ω_4 получим

$$w = \frac{(\omega_3\omega_4)^3 d\omega_4 d\omega_3 d\omega_4 (n_3+1)(n_4+1)}{(2\pi)^3 c^6\hbar^2(\lambda_1 - E_4 + E_1 + \omega_4)^2}|(\vec{d}_{14}\vec{e}_3^{\,*})(\vec{d}_{43}\vec{e}_4^{\,*})|^2|C_1|^2|D_1|^2, \quad (16)$$

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_4,$$

что совпадает с коэффициентом при $(\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 - \omega_4)^{-2}$ в вероятности (6), поскольку при больших временах справедлива стационарная теория возмущений. Отметим, что в пределе теории возмущений по полям накачки $|C_1|^2 \simeq 1$, $|D_1|^2 \simeq |W_{12}|^2|W_{32}|^2/\hbar^2\varepsilon_{21}^2\varepsilon_{31}^2$ и вероятность (16) имеет вид произведения двух выражений типа ([10]), т. е. является величиной второго порядка малости относительно вероятности двухфотонного распада третьего уровня. В обратном предельном случае сильных резонансных полей накачки, когда величины $|W_{12}|$, $|W_{32}|$

намного превышают расстройки резонанса ε_{21}, ε_{31}, величина $|C_1|^2|D_1|^2$ уже не мала и вероятность (16), принимающая вид

$$w = \frac{(\omega_3\omega_4)^3 d\omega_4 do_3 do_4 (n_3+1)(n_4+1)}{(2\pi)^3 c^6 \hbar^2 (\lambda_1 - E_4 + E_1 + \omega_4)^2} |(\vec{d}_{14}\vec{e}_3^{\,*})(\vec{d}_{43}\vec{e}_4^{\,*})|^2 \frac{|W_{12}|^2 |W_{32}|^2}{(|W_{12}|^2 + 2|W_{32}|^2)}, \quad (17)$$

имеет порядок величины вероятности двухфотонного распада третьего уровня. Эта последняя тоже может быть не мала, если знаменатели в (6), (16) малы и теория возмущений по излучаемым фотонам ω_3, ω_4 неприменима. В этом случае надо использовать резонансное приближение не только по полям накачки, но и по излучаемым полям, что будет сделано в отдельной публикации.

В заключение отметим, что приведенные здесь формулы дают возможность рассчитывать всевозможные процессы с участием четырех фотонов при условии применимости теории возмущений по излучаемым фотонам.

Институт физических исследований
Академии наук Армянской ССР

Հայկական ՍՍՀ ԳԱ ակադեմիկոս Մ. Լ. ՏԵՐ-ՄԻՔԱՅԵԼՅԱՆ, Վ. Հ. ՉԱԼԹԻԿՅԱՆ

Ատոմի անցումների ռեզոնանսային երկու ուժեղ ճառագայթումների դաշտում եռամակարդակ ատոմի երկֆոտոն տրոհումը

Դիտարկվում է եռամակարդակ ատոմ, որը գտնվում է ω_1 հաճախությամբ n_1 և ω_2 հաճախությամբ n_2 ֆոտոնների դաշտում, ընդ որում ω_1 և ω_2-ը ռեզոնանսի մոտ են ատոմային $1 \to 2$ և $2 \to 3$ անցումներին (նկ.) համապատասխանաբար։ Գրվում են ռեզոնանսային մոտավորության այդ սիստեմի ստացիոնար վիճակների ալիքային ֆունկցիաները՝ $\Phi_{1,2,3}(n_i)$ (1)։ Այնուհետև որպես խոտորում մտցվում է համակարգի փոխազդեցությունը ω_3 և ω_4 հաճախությամբ ֆոտոնային դաշտերի հետ (5) և խոտորումների տեսության երկրորդ մոտավորությամբ հաշվարկվում է ω_3 և ω_4 ֆոտոնների միաժամանակ առաքման հավանականությունը Φ_1 վիճակների միջև համակարգի անցումների հետևանքով ինչպես ստացիոնար (6), այնպես էլ ոչ ստացիոնար (16), (17) խոտորման դեպքում։ Հիմնականում ուսումնասիրվում է $\Phi_1 \to \Phi_1$ անցումը, որի ժամանակ կլանվում են ուժեղ դաշտի ω_1 և ω_2 ֆոտոնները և առաքվում ω_3 և ω_4 ֆոտոնները։ Այդ դեպքում ստացված է ճառագայթման սպեկտրը (7)—(8) և ցույց է տված, որ ռեզոնանսային պայմաններում (3) $\omega_1 + \omega_2 \to \omega_3 + \omega_4$ պրոցեսի հավանականությունը կարող է լինել նույն կարգի մեծության ինչպես երրորդ Φ_3 մակարդակի երկֆոտոն տրոհումը։

ЛИТЕРАТУРА—ԳՐԱԿԱՆՈՒԹՅՈՒՆ

[1] *A. Javan*, Proc. of the Intern. School of phys. Enrico Fermi cours XXXI, N. Y., 1964. [2] *П. А. Апанасевич, Д. Н. Ордобаев*, ЖПС, т. 4, 134 (1966). [3] *S. H. Autler, C. H. Townes*, Phys. Rev., vol. 100, 703 (1955) [4] *R. G. Brewer, E. L. Hahn*, Phys. Rev., vol. 11A, 1641 (1975). [5] *Р. Е. Мовсесян, В. О. Чалтыкян*, ДАН АрмССР, т. 52, № 33 (1971). [6] *М. Л. Тер-Микаелян*, Препринт ИФИ 74—11, Аштарак, 1974. [7] *Б. А. Глушко, В. О. Чалтыкян*, Препринт ИФИ 25—75, Аштарак, 1975; Изв. АН АрмССР, Физика, т. 13, 260 (1978). [8] *М. Л. Тер-Микаелян, Р. Е. Мовсесян*, Препринт ИФИ 23—75, Аштарак, 1975. [9] *М. Л. Тер-Микаелян, М. С. Саркисян*, Препринт ИФИ 26—75, Аштарак, 1975. [10] *M. Göppert-Mayer*, Ann. Phys. (Leipz.) B. 9, 273 (1931). [11] *Д. Н. Клышко*, Фотоны и нелинейная оптика, Наука, М., 1980. [12] *В. М. Арутюнян, Э. Г. Канецян, В. О. Чалтыкян*, ЖЭТФ, т. 59, 195 (1970). [13] *Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц*, Квантовая механика. Нерелятивистская теория, Наука, М., 1974.