

УДК 535.36

В. П. Чеботаев

КОГЕРЕНТНОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ
РАССЕЯНИЕ В РАЗНЕСЕННЫХ
ОПТИЧЕСКИХ ПОЛЯХ

Электромагнитное поле, резонансно взаимодействуя с атомом, смешивает его состояния. Атом оказывается поляризованным на частоте полей. При нелинейном взаимодействии полей дипольный момент может возникать на комбинационных частотах. После прекращения действия поля когерентность между состояниями сохраняется в течение времени, зависящего от спонтанного затухания уровней, столкновений и пр. Сохранение когерентности и наведенного дипольного момента лежат в основе таких фундаментальных явлений в оптике, как сверхизлучение, эхо, затухание наведенной индукции, нутации [1]. В газе движение атомов или молекул приводит к пространственному переносу дипольного момента. Это лежит в основе метода разнесенных полей, развитого в СВЧ-диапазоне для получения узких резонансов с шириной, обратной времени пролета атома между полями [2].

В СВЧ-диапазоне размеры области (зазор резонатора), в которой сосредоточены поля, меньше длины волны. Поэтому все атомы находятся в одинаковых условиях и, следовательно, одинаковым образом взаимодействуют с полем. Совсем иная ситуация в оптическом диапазоне. Здесь размеры полей значительно больше длины волны. Это обстоятельство приводит к тому, что разность фаз дипольного момента атома и поля оказывается зависящей от координат, т. е. от скорости частиц¹. Усреднение по скоростям дает среднее нулевое значение дипольного момента, вносимого атомами в какую-либо точку пространства.

Для наблюдения эффектов в оптическом диапазоне, связанных с переносом когерентности в пространстве, необходимо осуществить перенос макроскопической поляризации среды. В этом состоит принципиальное различие методов разнесенных полей в оптическом и СВЧ-диапазонах. Долгое время считалось, что из-за указанных выше ограничений реализовать метод разнесенных полей в оптическом диапазоне невозможно. Недавно в работах [3, 4] было показано, что при нелинейном взаимодействии оптических полей имеет место устранение эффекта Доплера и образование резонансов в разнесенных оптических полях. При взаимодействии с двухуровневыми атомами для наблюдения резонансов поглощения необходимы три пучка [3]. После взаимо-

¹ Образование сдвига фазы между дипольным моментом атома и полем, зависящим от скорости, можно интерпретировать как следствие эффекта Доплера. Атом с поперечной скоростью v_x за время дрейфа T между полями «накопит» фазовый угол $\phi = kv_x T$, где k — волновое число. Если разность фаз двух полей равна нулю, то угол ϕ определяет разность фаз между дипольным моментом атома и поля.

действия со вторым полем фаза дипольного момента испытывает скачок, величина которого такова, что компенсирует доплеровский угол за время пролета между первым и третьим полем. При двухфотонном поглощении в поле стоячей волны в метане доплеровский эффект полностью устраняется при взаимодействии в одном поле [5]. Здесь взаимодействие происходит так же, как с неподвижными атомами (или

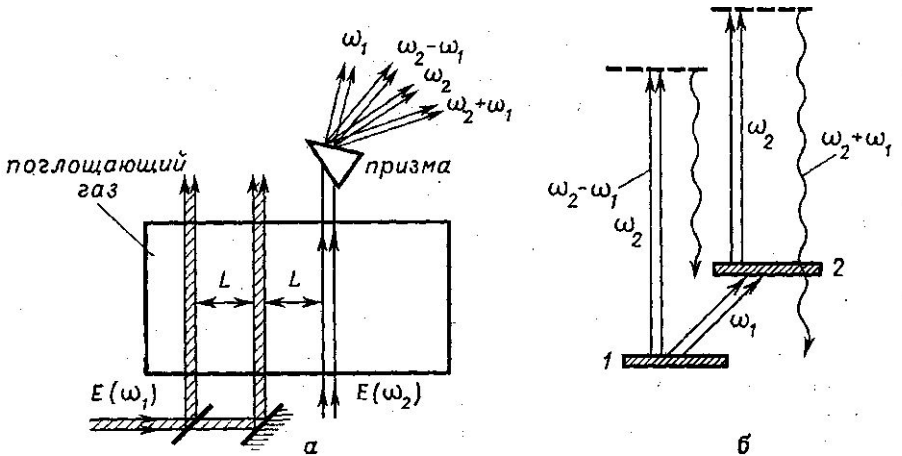


Рис. 1. Схема наблюдения КИРП и когерентного комбинационного рассеяния в разнесенных полях (а). Схема переходов (б)

с атомами, движущимися в направлении, перпендикулярном направлению распространения волны). Поэтому для наблюдения двухфотонных резонансов оказалось достаточно двух разнесенных полей.

Первые независимые эксперименты [6—9] по наблюдению резонансов поглощения в разнесенных полях показали эффективность этого метода.

В работе [10] было обращено внимание на новое для оптики явление — возникновение когерентного излучения в разнесенных полях (КИРП). Оно возникает из областей, где отсутствуют поля. Как и резонансы поглощения, это явление обусловлено переносом макроскопической поляризации среды. Схема наблюдения этого явления показана на рис. 1.

Два монохроматических поля, отстоящих друг от друга на расстоянии L , резонансно взаимодействуют с атомами в газе низкого давления. На расстояниях, кратных L , от второго поля возникает когерентное излучение на частоте действующих полей. Когерентное излучение обладает интересными свойствами, которые были рассмотрены в [10]. Первое наблюдение излучения в пространственно-разнесенных полях было осуществлено в [11], а в импульсных полях стоячей волны — в [12]. Привлекательная особенность этого явления заключается в том, что оно естественным образом связало такие явления, как сверхизлучение, эхо, нутации, с одной стороны, и резонансы поглощения в разнесенных полях, с другой стороны. Ранее эти явления рассматривались обычно раздельно.

В этой работе мы рассматриваем новое явление — когерентное комбинационное рассеяние (ККР) в разнесенных полях. Оно возникает в линейном по падающему полю приближении. Физическая природа его

резко отличается от процессов ВКР. Оно может наблюдаться в поглощающей среде и, следовательно, не связано с процессом усиления.

Под действием двух полей, резонансных переходу $1 \rightarrow 2$, имеет место образование поляризации на расстоянии $x=2L$ от первого пучка. Если в этой области имеется поле на частоте ω_2 и комбинационные переходы разрешены, то естественно ожидать возникновения когерентного комбинационного рассеяния на частотах $\omega \pm \omega_{12}$.

Если однофотонный переход между уровнями 1 и 2 запрещен, то когерентность между уровнями 1 и 2 можно создать, действуя на систему двумя полями с частотами ω_1 и ω_2 , разность частот между которыми равна частоте $\omega_{12} = \omega_1 - \omega_2$. Именно этот случай рассматривается более детально в данной работе.

Так как физическая природа описываемого явления имеет много общего с возникновением КИРП в двухуровневой системе, рассмотрим кратко простую физическую интерпретацию КИРП в соответствии с [10]. Для простоты рассмотрим пучок расходящихся частиц, вылетающих из точки z_1 в первом поле. После взаимодействия с ним все частицы в области дрейфа имеют дипольный момент на частоте перехода и одинаковую фазу (расходимость пучка частиц мала, что позволяет пренебречь изменением фазы поля при пролете частицы через него). Поэтому на большом расстоянии от поля все частицы имеют одинаковые фазы в точках z_3, z_3' . Поэтому пространственная гармоника поляризации отсутствует.

Если на расстоянии $x=L$ поместить второе поле, то после взаимодействия со вторым полем дипольный момент испытывает скачок фазы $\Delta\varphi = \pm 2kz_2$. Легко видеть, что на расстоянии $x=2L$ благодаря этому скачку фазы дипольный момент частицы оказывается в синхронизме с волной ($2z_2 = z_3$). Это и приводит к возникновению макроскопической поляризации.

Теперь перейдем к рассмотрению взаимодействия двух и более разнесенных полей с трехуровневым атомом.

Газ трехуровневых атомов (см. рис. 3) взаимодействует с полями на частотах ω_1, ω_2 и ω_3 . Уровни 1 и 2 долгоживущие. Частоты ω_1 и ω_2 близки к частоте ω_{10} перехода $1 \rightarrow 0$ и частоте ω_{20} перехода $2 \rightarrow 0$.

$$\begin{aligned}
 E(x, z, t) &= E_1(x, z) \cos \omega_1 t + E_2(x, z) \cos \omega_2 t + E_3(x, z) \cos \omega_3 t, \\
 E_1(x, z) &= g(x) E_1 \cos(k_1 z_1 + \varphi_1) + g(x-L) \tilde{E}_1 \cos(k_1 z_2 + \varphi_1'), \\
 E_2(x, z) &= g(x) E_2 \cos(k_2 z_1 + \varphi_2) + g(x-L) \tilde{E}_2 \cos(k_2 z_2 + \varphi_2'), \\
 E_3(x, z) &= g(x-2L) E_3 \cos(k_3 z_3 + \varphi_3),
 \end{aligned}
 \tag{1}$$

$$g(y) = \begin{cases} 1 & \text{при } 0 < y < a, \\ 0 & \text{при } y > a, \quad y < 0. \end{cases}$$

В области $x \sim 0$ и $x=2L$ газ взаимодействует с двумя парами волн на частотах ω_1 и ω_2 . На расстоянии $2L$ от первого луча газ взаимодействует с полем E_3 на частоте ω_3 , которую ради определенности будем рассматривать близкой к частоте перехода $0 \rightarrow 1$. Как будет показано ниже, на расстоянии $x=2L$ возникает когерентное излучение на частоте $\omega_3 - \omega_1 + \omega_2$. Будем рассматривать условия, близкие к резонансным. Поэтому поле $E_1(t)$ и $E_3(t)$ взаимодействует с переходом $1 \rightarrow 0$, а поле $E_2(t)$ с переходом $2 \rightarrow 0$.

Предположим, что расстройки частот $\Omega_1 = \omega_1 - \omega_{10}$, $\Omega_2 = \omega_2 - \omega_{20}$, $\Omega_3 = \omega_3 - \omega_{10}$ много больше констант затухания уровней. Тогда уравнения для амплитуд вероятности запишем в виде

$$\begin{aligned} \dot{a}_0 &= G_1(x, z) e^{-i\Omega_1 t} a_1 + G_2(x, z) e^{-i\Omega_2 t} a_2 + G_3 e^{-i\Omega_3 t} a_1, \\ \dot{a}_1 &= -G_1^*(x, z) e^{i\Omega_1 t} a_0 - G_3^* e^{i\Omega_3 t} a_0, \\ \dot{a}_2 &= -G_2^*(x, z) e^{i\Omega_2 t} a_0, \end{aligned} \quad (2)$$

здесь

$$G_1 = \frac{i\rho_{01}E_1(xz)}{\hbar}, \quad G_2 = \frac{i\rho_{02}E_2(x, z)}{\hbar}, \quad G_3 = \frac{i\rho_{01}E_3(x, z)}{\hbar},$$

a_1, a_2, a_0 — амплитуды вероятности на уровнях 1, 2 и 0 соответственно, ρ_{01} и ρ_{02} — матричные элементы переходов $0 \rightarrow 1$ и $0 \rightarrow 2$.

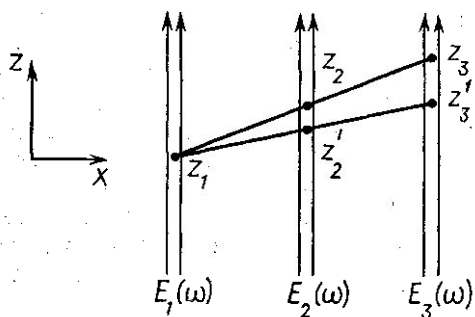


Рис. 2. Схема взаимодействия частицы с тремя полями

Мы будем интересоваться поляризацией среды, которая возникает на расстоянии $x=2L$ в точке z_3 под действием поля E_3 на частоте ω_3 .

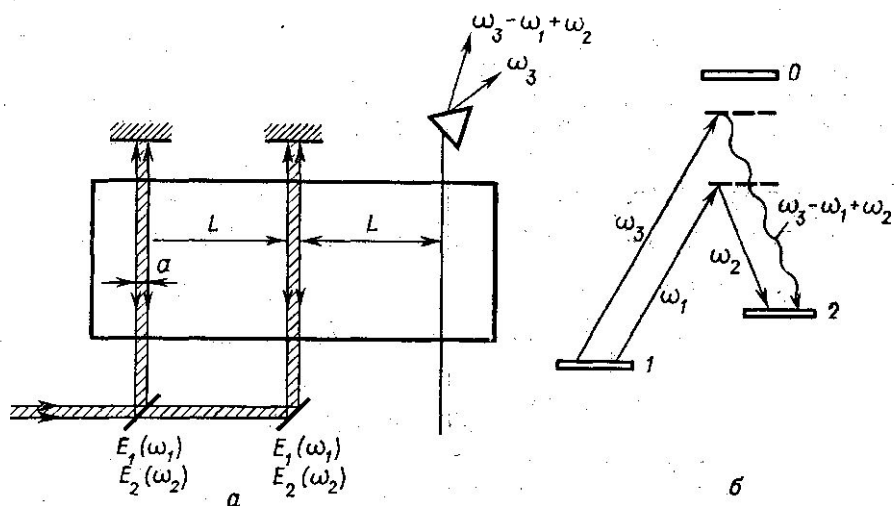


Рис. 3. Схема наблюдения когерентного комбинационного рассеяния трехуровневых атомов (а). Схема переходов в трехуровневой схеме (б)

Чтобы найти эту поляризацию, мы должны усреднить дипольный момент от частиц, влетающих в точку z_3 с различными скоростями v_z .

Для простоты ограничимся рассмотрением случая $(\Omega_1 - \Omega_2)\tau \ll 1$, где $\tau = a/u$ — время пролета частицы в пучке, u — средняя скорость. В этом случае, как показано в [11], основные процессы определяются

двухквантовыми переходами. В момент времени t_1 , когда частица влетает в первый пучок, имеем $a_1=1$, $a_0=a_2=0$.

После взаимодействия с первым пучком амплитуда вероятности равна:

$$a_2^{(1)} = \frac{G_1(z_1) G_2^*(z_1)}{i\Omega_1} \tau e^{-i(\Omega_1 - \Omega_2)t_1},$$

здесь τ — время пролета частицы в пучке, $\tau = a/u$, u — скорость частицы, z_1 — координата атома в первом пучке. В области дрейфа $a_1=1$, $a_0=0$. Взаимодействие со вторым пучком будем рассматривать в четвертом порядке теории возмущения.

После взаимодействия частицы со вторым пучком вероятности $a_2^{(2)}$ и $a_1^{(2)}$ равны:

$$a_2^{(2)} = a_2^{(1)} + \frac{\tilde{G}_1 G_2^*}{i\Omega_1} \tau e^{-i(\Omega_1 - \Omega_2)t_2} - \frac{\tilde{G}_1 \tilde{G}_2^* |\tilde{G}_1|^2}{2\Omega_1^2} \tau^2 e^{-i(\Omega_1 - \Omega_2)t_2} -$$

$$- \frac{\tilde{G}_1 \tilde{G}_2^* |G_2|^2}{2\Omega_1 \Omega_2} \tau^2 e^{-i(\Omega_1 - \Omega_2)t_2} + \frac{|\tilde{G}_2|}{i\Omega_2} \tau a_2^{(1)} - \frac{|\tilde{G}_1|^2 |\tilde{G}_2|^2}{2\Omega_1 \Omega_2} \tau^2 a_2^{(1)},$$

$$a_1^{(2)} = 1 + \frac{|\tilde{G}_1|^2 \tau}{i\Omega_1} - \frac{|\tilde{G}_1|^4 \tau^2}{2\Omega_1^2} - \frac{|\tilde{G}_1|^2 |\tilde{G}_2|^2 \tau^2}{2\Omega_1 \Omega_2} + \frac{\tilde{G}_1^* \tilde{G}_2}{i\Omega_2} \tau e^{+i(\Omega_1 - \Omega_2)t_2} a_2^{(1)}, \quad (3)$$

здесь z_2 — координата атома во втором пучке.

Нас будет интересовать дипольный момент на комбинационной частоте, которая близка к частоте перехода $0 \rightarrow 2$.

Дипольный момент в точке x , z_3 равен

$$d(x, v_2, z_3, t) = p_{02} a_2 a_0^* e^{i\omega_{02}t} + \text{к. с.}$$

Амплитуда вероятности $a_0^{(3)}$ в третьем пучке равна

$$a_0^{(3)} = -G_3 \frac{1}{i\Omega_3} e^{-i\Omega_3 t} a_1^{(2)}.$$

Интересующий нас дипольный момент в точке x , z_3 вблизи частоты ω_{02} равен

$$d(x, v_2, z_3, t) = p_{02} \frac{G_3^* e^{i\Omega_3 t}}{i\Omega_3} a_1^{(2)*} a_2^{(2)} e^{i\omega_{02}t} + \text{к. с.} \quad (4)$$

Учитывая, что $t_1 = t - 2T$ и $t_2 = t - T$, где T — время пролета частицы между полями, найдем дипольный момент на частоте $\omega_3 - \omega_1 + \omega_2$

$$d(x, z_3, v_3, t) = p_{02} \frac{G_3^* \tau^3}{\Omega_3} \frac{\tilde{G}_1^2 \tilde{G}_2^*}{\Omega_1^2 \Omega_2} G_1^*(z_1) G_2(z_1) \times$$

$$\times e^{-i(\Omega_1 - \Omega_2) \frac{(x-2L)}{u}} e^{+i(\omega_3 - \omega_1 + \omega_2)t} + \text{к. с.} \quad (5)$$

Поляризация в точке z_3 создается атомами с различными скоростями v_z .

Усредняя дипольный момент по скоростям и учитывая, что $z_2 = z_1 + v_2 T$, $z_3 = z_1 + v_2 \cdot 2T$, получим

$$P = i p_{02} \frac{p_{01} E_3}{2^3 \hbar \Omega_3} \tau^3 \frac{p_{01}^3 p_{02}^3 E_1^3 E_2^3}{\hbar^6 \Omega_1^2 \Omega_2} e^{-i(\Omega_1 - \Omega_2)T} \times$$

$$\times \int_{-\infty}^{\infty} dv_z f(v_z) \cos \left[(k_3 - k_1 + k_2)z - \frac{v_z}{u} (k_2 - k_1)(x - 2L) + \theta \right] \times$$

$$\times e^{i(\omega_3 - \omega_1 + \omega_2)t} + \text{к. с.}, \quad (6)$$

здесь θ — фаза, зависящая от фаз полей $\varphi_1, \varphi_1', \varphi_2, \varphi_2'$. При $x = 2L$ возникает пространственная гармоника поляризации на комбинационной частоте. Усреднение по скоростям дает полное число частиц N , которое взаимодействует с полем. В соответствии с уравнением Максвелла поляризация порождает излучение на этой частоте.

Поляризация может быть представлена в виде

$$p(z, t) = (p_+ e^{ik_z z} + p_- e^{-ik_z z}) e^{i\omega_\pm t} + \text{к. с.},$$

здесь $k_\pm = k_3 - k_1 + k_2$, $\omega_\pm = \omega_3 - \omega_1 + \omega_2$, а амплитуда излучения связана с поляризацией соотношением

$$E_\pm = 2\pi i k_l P_\pm.$$

Здесь мы рассматривали пространственно разнесенные поля. Сходные явления будут наблюдаться в импульсных полях. В этом случае через время $2T$ после первого импульса можно наблюдать возникновение сигнала на комбинационных частотах, которое можно интерпретировать как эффект CARS-эха.

Рассмотренный метод можно применять для исследований когерентных релаксационных процессов, когда однофотонные переходы запрещены. Это может оказаться важным для исследований конденсированных сред.

В заключение автор выражает благодарность Е. А. Титову за обсуждение, ценные замечания и советы, Б. Я. Дубецкому и Е. В. Бакланову за обсуждения, стимулирующие эту работу.

ЛИТЕРАТУРА

1. Walther H. (Ed.) Laser Spectroscopy of Atoms and Molecules Topics. Appl. Phys., vol. 2 (Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 1976).
2. Ramsey N. F. Molecular Beams. New York—London, 1956.
3. Baklanov Ye. V., Dubetsky B. Ya., Chebotayev V. P. «Appl. Phys.», 1976, 9, 171.
4. Baklanov Ye. V., Chebotayev V. P., Dubetsky B. Ya. «Appl. Phys.», 1976, 11, 201; Baklanov Ye. V., Chebotayev V. P. «Appl. Phys.», 1977, 12, 97.
5. Василенко Л. С., Чеботаев В. П., Шишаев А. В. «Письма в ЖЭТФ», 1970, 12, 161.
6. Bergquist J. C., Lee S. A., Hall J. L. «Phys. Rev. Lett.», 1977, 38, 159.
7. Salour M. M., Cohen-Tannoudji C. «Phys. Rev. Lett.», 1977, 38, 757.
8. Teets R., Eckstein J., Hansch T. W. «Phys. Rev. Lett.», 1977, 38, 760.
9. Chebotayev V. P., Shishayev A. V., Yurshin B. Ya., Vasilenko L. S. «Appl. Phys.», 1978, 15, 43.
10. Чеботаев В. П. Доклад на V Вавиловской конференции по нелинейной оптике. Новосибирск, 1977.
11. Багаев С. Н., Дычков А. С., Чеботаев В. П. «Письма в ЖЭТФ», 1977, 26, 591.
12. Chebotayev V. P., Dyuba N. M., Skvortsov M. I., Vasilenko L. S. «Appl. Phys.», 1978, 15, 319.
13. Бегеров И. М., Матюгин Ю. А., Чеботаев В. П. ЖЭТФ, 1973, 64, 1495.

Институт теплофизики СО АН СССР
Новосибирск