Письма в ЖЭТФ, том 117, вып. 6, с. 406 – 413

Влияние свободного движения атомов на эффекты, зависящие от плотности атомов, в нелинейной лазерной спектроскопии резонансных газовых сред

В. И. Юдин[a,b,c 1)], *А. В. Тайченачев*[a,b], *М. Ю. Басалаев*[a,b,c], *О. Н. Прудников*[a,b], *В. Г. Пальчиков*[d,e], *Т. Занон-Виллетт*[f 2)], *С. Н. Багаев*[a,b]

[a] *Новосибирский государственный университет, 630090 Новосибирск, Россия*

[b] *Институт лазерной физики Сибирского отделения РАН, 630090 Новосибирск, Россия*

[c] *Новосибирский государственный технический университет, 630073 Новосибирск, Россия*

[d] *Всероссийский научно-исследовательский институт физико-технических и радиотехнических измерений, 141570 Менделеево, Россия*

[e] *Национальный исследовательский ядерный университет "МИФИ", 115409 Москва, Россия*

[f] *Sorbonne Université, Observatoire de Paris, Université PSL, CNRS, LERMA, F-75005 Paris, France*

Поступила в редакцию 3 февраля 2023 г.
После переработки 7 февраля 2023 г.
Принята к публикации 7 февраля 2023 г.

Мы развиваем нелинейную по полю теорию распространения монохроматической световой волны в газе двухуровневых атомов в условии неоднородного доплеровского уширения линии, рассматривая при этом самосогласованное решение уравнений Максвелла–Блоха в приближении среднего поля и одноатомной матрицы плотности. Показано, что при таком подходе возникает существенная деформация доплеровского резонансного контура (сдвиг, асимметрия), которая зависит от плотности атомов. Данный эффект является следствием только свободного движения атомов в газе и не связан с межатомным взаимодействием. При этом частотный сдвиг линейного по полю вклада в сигнале пропускания более чем на порядок превышает сдвиг из-за межатомного диполь-дипольного взаимодействия, а первая нелинейная поправка испытывает еще более сильную деформацию, которая превышает влияние межатомного взаимодействия на три порядка. Обнаруженные эффекты, обусловленные свободным движением атомов, требуют значительного пересмотра существующей картины спектроскопических эффектов, зависящих от плотности атомов в газе.

DOI: 10.31857/S1234567823060034, EDN: qrsyup

Современная лазерная спектроскопия является мощным инструментом исследований, имеющим огромное значение как для фундаментальной науки, так и для многочисленных практических приложений. Базовые принципы этой науки были сформулированы несколько десятилетий назад и широко представлены в научной и учебной литературе [1–7]. Особую роль играет лазерная спектроскопия атомарных газов для квантовых стандартов частоты и времени, для которых репером служат резонансы, возбуждаемые на частоте атомных переходов. При этом метрологические характеристики данных устройств в значительной степени определяются наличием сдвигов частоты резонансных переходов. Эти сдвиги можно разделить на две основные категории: полевые, индуцированные внешними статическими и переменными электромагнитными полями, и столкновительные, обусловленные межатомным взаимодействием.

В контексте столкновительных сдвигов для одно-компонентных газовых сред, особую важность имеют коллективные эффекты вследствие межатомного диполь-дипольного взаимодействия, которое влияет на форму резонансной линии (сдвиг, асимметрия, уширение) [8–45]. Как известно [10], в случае ансамбля двухуровневых атомов с невозмущенной частотой ω_0 для замкнутого оптического перехода $|g\rangle\leftrightarrow|e\rangle$ (см. рис. 1), масштаб влияния диполь-дипольного взаимодействия определяется величиной сдвига Лорентц–Лоренца $\Delta_{\mathcal{LL}}=-\pi n k_0^{-3}\gamma_0$, где n есть плотность атомов (число частиц в еди-

1) e-mail: viyudin@mail.ru
2) T. Zanon-Willette.

нице объема), $k_0 = \omega_0/c$ (c есть скорость света в вакууме), γ_0 есть скорость спонтанного распада верхнего уровня (см. рис. 1). В частности, для ансамбля атомов, заключенного в плоском слое толщиной L, полный отрицательный сдвиг, вызванный диполь-дипольным взаимодействием, описывается формулой [8]:

$$\Delta_{dd} = \Delta_{\mathcal{LL}} - \frac{3}{4}\Delta_{\mathcal{LL}}\left(1 - \frac{\sin 2k_0L}{2k_0L}\right) < 0, \tag{1}$$

где второй член есть коллективный лэмбовский сдвиг. Для достаточно протяженной среды ($k_0L \gg 1$) из (1) получаем

$$\Delta_{dd} \approx \frac{1}{4}\Delta_{\mathcal{LL}} = -0.79nk_0^{-3}\gamma_0. \tag{2}$$

Согласно современным представлениям, именно диполь-дипольное взаимодействие является основной причиной частотного сдвига, пропорционального плотности атомов в газе (2). Однако недавно были обнаружены ранее неизвестные эффекты, обусловленные свободным движением атомов в газе, которые также зависят от плотности атомов и приводят к деформации (сдвиг, асимметрия) линейного по полю доплеровского контура поглощения [46]. В частности, сдвиг вершины имеет положительный знак и более чем на порядок превышает величину (2). Эти эффекты возникают при описании распространения световой волны в рамках самосогласованного решения уравнений Максвелла–Блоха в одноатомном приближении, и поэтому никак не связаны с межатомным взаимодействием.

В настоящей работе мы разработали алгоритм построения нелинейной по полю теории распространения бегущей волны в газе двухуровневых атомов как самосогласованного решения уравнений Максвелла–Блоха. Это позволило получить в аналитическом виде выражение для нелинейного сигнала пропускания в среде с произвольной оптической толщиной. Было обнаружено, что вершина резонансной формы линии главной нелинейной поправки имеет положительный сдвиг, который пропорционален плотности атомов и более чем на три порядка превышает сдвиг от межатомного диполь-дипольного взаимодействия (2). Этот огромный эффект может служить отличным объектом для экспериментального исследования ранее не изученных эффектов, обусловленных свободным движением атомов в газе. Экспериментальное подтверждение результатов, полученных в данной работе, будет иметь принципиальное значение для существенного пересмотра современной картины спектроскопических эффектов, зависящих от плотности атомов в газе.

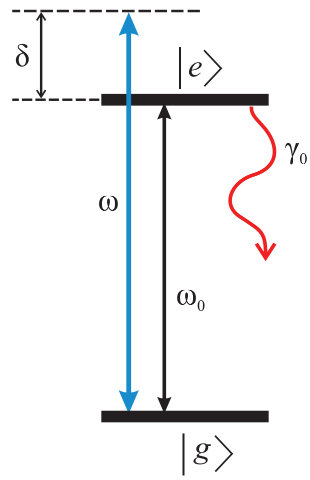


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема двух-уровневого атома

Рассмотрим одномерную задачу распространения воль оси z плоской световой волны с вещественным электрическим полем $E = E(t,z)$ в газе свободнодвижущихся резонансных двухуровневых атомов с невозмущенной частотой перехода ω_0 (см. рис. 1). Взаимодействие атомов с полем описывается оператором электро-дипольного взаимодействия $-\hat{d}E$. Наш анализ будет проводиться в рамках самосогласованного решения системы уравнений Максвелла–Блоха, которая включает в себя волновое уравнение для поля (в системе СГС):

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\right)E(t,z) = \frac{4\pi}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}P(t,z). \tag{3}$$

Поляризация среды в одноатомном приближении определяется как $P(t,z) = n\langle D\rangle$, где $\langle D\rangle$ есть средний дипольный момент атома. В случае монохроматической волны с частотой ω поле $E(t,z)$ и поляризацию среды $P(t,z)$ можно представить следующим образом:

$$\begin{aligned} E(t,z) &= e^{-i\omega t}E(z) + e^{i\omega t}E^*(z), \\ P(t,z) &= e^{-i\omega t}P(z) + e^{i\omega t}P^*(z). \end{aligned} \tag{4}$$

Тогда, исходя из (3), для отрицательно частотных компонент $E(z)$ и $P(z)$ получаем уравнение:

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + k^2\right)E(z) = -4\pi k^2 P(z)\,, \tag{5}$$

где $k = \omega/c$ есть волновое число в вакууме.

Атомарный газ мы будем описывать одноатомной матрицей плотности $\hat{\rho}(v)$ (v есть скорость атома), компоненты которой $\rho_{mn}(v) = \langle m|\hat{\rho}(v)|n\rangle$ (где $m,n = e,g$) для замкнутой двухуровневой системы в резонансном приближении описываются следующими уравнениями:

$$\left[v\frac{\partial}{\partial z}+\frac{\gamma_0}{2}-i\delta\right]\rho_{eg}(v)=\frac{id_{eg}E(z)}{\hbar}[\rho_{gg}(v)-\rho_{ee}(v)],$$

$$\left[v\frac{\partial}{\partial z}+\gamma_0\right]\rho_{ee}(v)=\frac{i}{\hbar}[d_{eg}E(z)\rho_{ge}(v)-d_{ge}E^*(z)\rho_{eg}(v)],$$

$$\rho_{ge}(v)=\rho^*_{eg}(v),\quad \rho_{gg}(v)+\rho_{ee}(v)=f(v),\qquad(6)$$

$$\int_{-\infty}^{\infty}f(v)dv=1,$$

где $\delta=\omega-\omega_0$ есть отстройка частоты лазера от частоты атомного перехода, $d_{eg}=\langle e|\hat{d}|g\rangle=d^*_{ge}$ есть матричный элемент оператора дипольного момента. Диагональные элементы матрицы плотности $\rho_{gg}(v)$ и $\rho_{ee}(v)$ описывают населенности в основном и возбужденном состояниях соответственно, а недиагональные элементы $\rho_{eg}(v)$ и $\rho_{ge}(v)$ соответствуют оптической когерентности. Функция $f(v)$ описывает скоростное распределение атомов, которое мы будем полагать максвелловским:

$$f(v)=f_M(v)=\frac{e^{-(v/v_0)^2}}{v_0\sqrt{\pi}},\quad v_0=\sqrt{\frac{2k_BT}{m}},$$

где k_B есть константа Больцмана, T есть температура газа, m есть масса атома. Оператор $v(\partial/\partial z)$ в левой части (6) есть одномерный вариант скалярного оператора $(\mathbf{v}\cdot\nabla)$. Отрицательно частотная компонента поляризации среды в уравнении (5) для нашей одномерной задачи определяется как:

$$P(z)=n\langle d_{ge}\rho_{eg}(v)\rangle_v,\qquad(7)$$

где $\langle...\rangle_v$ обозначает интегрирование по скоростям, $\int_{-\infty}^{+\infty}...dv$. Таким образом, уравнения (5)–(7) составляют систему уравнений Максвелла–Блоха в нашем случае.

Будем искать решение уравнений (5)–(7) по теории возмущений, исходя из предположения малости следующего параметра (т.е. малого насыщения оптического перехода):

$$\frac{|d_{eg}E(z)|}{\hbar\gamma_0/2}\ll 1,\qquad(8)$$

по которому осуществляется разложение для матрицы плотности:

$$\hat{\rho}(v)=\hat{\rho}^{(0)}(v)+\hat{\rho}^{(1)}(v)+\hat{\rho}^{(2)}(v)+\hat{\rho}^{(3)}(v)+...\qquad(9)$$

В качестве начального члена разложения будем использовать матрицу плотности для газа невозмущенных атомов, находящихся в основном состоянии:

$$\rho^{(0)}_{gg}(v)=f(v),\ \rho^{(0)}_{ee}(v)=0,\ \rho^{(0)}_{eg}(v)=\rho^{(0)}_{ge}(v)=0.\qquad(10)$$

В соответствии с (9), для электрического поля (4) и поляризации (7) имеет место следующее разложение:

$$E(z)=E^{(1)}(z)+E^{(3)}(z)+E^{(5)}(z)+...,\qquad(11)$$
$$P(z)=P^{(1)}(z)+P^{(3)}(z)+P^{(5)}(z)+...$$

Используя (9)–(11) в уравнениях (5)–(7), на первом шаге итерационной процедуры получаем систему уравнений

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2}+k^2\right)E^{(1)}(z)=-4\pi k^2P^{(1)}(z),\qquad(12)$$

$$\left(v\frac{\partial}{\partial z}+\frac{\gamma_0}{2}-i\delta\right)\rho^{(1)}_{eg}(v)=\frac{i}{\hbar}d_{eg}E^{(1)}(z)f(v),$$

$$P^{(1)}(z)=n\langle d_{ge}\rho^{(1)}_{eg}(v)\rangle_v,$$

решение которой в случае бегущей волны, как было показано в [46], можно представить в следующем виде:

$$E^{(1)}(z)=\mathcal{E}e^{\mathcal{K}kz},\qquad(13)$$

$$\rho^{(1)}_{eg}(v)=\frac{id_{eg}f_M(v)}{\hbar(\gamma_0/2-i\delta+\mathcal{K}kv)}\,\mathcal{E}e^{\mathcal{K}kz}.$$

При этом комплексное безразмерное волновое число $\mathcal{K}$ определяется как решение уравнения:

$$\mathcal{K}^2+1=-\frac{i4\pi n|d_{eg}|^2}{\hbar}\left\langle\frac{f_M(v)}{\gamma_0/2-i\delta+\mathcal{K}kv}\right\rangle_v.\qquad(14)$$

Используя известное выражение

$$\gamma_0=\frac{4k_0^3|d_{eg}|^2}{3\hbar}$$

для скорости спонтанного распада верхнего уровня $|e\rangle$, перепишем (14) в виде:

$$\mathcal{K}^2+1=-i\left\langle\frac{3\pi nk_0^{-3}\gamma_0f_M(v)}{\gamma_0/2-i\delta+\mathcal{K}kv}\right\rangle_v,\qquad(15)$$

где явно фигурирует параметр межатомного диполь-дипольного взаимодействия $nk_0^{-3}\gamma_0$, несмотря на то, что мы работаем в приближении одноатомной матрицы плотности. Предполагая, что волна распространяется вдоль положительного направления оси Oz, накладываем следующие условия на решение уравнения (15):

$$\mathrm{Im}\{\mathcal{K}\}>0,\quad \mathrm{Re}\{\mathcal{K}\}<0.\qquad(16)$$

Второй шаг итерации заключается в определении поправки $\hat{\rho}^{(2)}(v)$ для матрицы плотности:

$$\left(v\frac{\partial}{\partial z}+\gamma_0\right)\rho^{(2)}_{ee}(v)=\qquad(17)$$

$$=\frac{i}{\hbar}\left[d_{eg}E^{(1)}(z)\rho^{(1)}_{ge}(v)-d_{ge}E^{(1)*}(z)\rho^{(1)}_{eg}(v)\right],$$

$$\rho^{(2)}_{gg}(v)=-\rho^{(2)}_{ee}(v),\quad \rho^{(2)}_{eg}(v)=\rho^{(2)}_{ge}(v)=0.$$

Подставляя сюда выражения из (13), получаем уравнение:

$$\left(v\frac{\partial}{\partial z}+\gamma_0\right)\rho_{ee}^{(2)}(v)= \tag{18}$$
$$=\frac{|d_{eg}\mathcal{E}|^2}{\hbar^2}\frac{[\gamma_0+(\mathcal{K}+\mathcal{K}^*)kv]f_M(v)e^{(\mathcal{K}+\mathcal{K}^*)kz}}{|\gamma_0/2-i\delta+\mathcal{K}kv|^2},$$

из которого находим:

$$\rho_{ee}^{(2)}(v)=-\rho_{gg}^{(2)}(v)=\frac{|d_{eg}\mathcal{E}|^2}{\hbar^2}\frac{f_M(v)e^{(\mathcal{K}+\mathcal{K}^*)kz}}{|\gamma_0/2-i\delta+\mathcal{K}kv|^2}. \tag{19}$$

На третьем шаге алгоритма мы определяем $\hat{\rho}^{(3)}(v)$, $E^{(3)}(z)$ и $P^{(3)}(z)$ из следующих уравнений:

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2}+k^2\right)E^{(3)}(z)=-4\pi k^2P^{(3)}(z), \tag{20}$$
$$\left[v\frac{\partial}{\partial z}+\frac{\gamma_0}{2}-i\delta\right]\rho_{eg}^{(3)}(v)=$$
$$=\frac{id_{eg}E^{(3)}(z)}{\hbar}[\rho_{gg}^{(0)}(v)-\rho_{ee}^{(0)}(v)]+$$
$$+\frac{id_{eg}E^{(1)}(z)}{\hbar}[\rho_{gg}^{(2)}(v)-\rho_{ee}^{(2)}(v)],$$
$$P^{(3)}(z)=n\langle d_{ge}\rho_{eg}^{(3)}(v)\rangle_v.$$

Используя (10), (13) и (19), получаем уравнение для $\rho_{eg}^{(3)}(v)$:

$$\left[v\frac{\partial}{\partial z}+\frac{\gamma_0}{2}-i\delta\right]\rho_{eg}^{(3)}(v)= \tag{21}$$
$$=\frac{id_{eg}E^{(3)}(z)f_M(v)}{\hbar}-\frac{i2d_{eg}\mathcal{E}|d_{eg}\mathcal{E}|^2f_M(v)e^{(2\mathcal{K}+\mathcal{K}^*)kz}}{\hbar^3|\gamma_0/2-i\delta+\mathcal{K}kv|^2},$$

из которого вытекает следующая пространственная зависимость для $E^{(3)}(z)$:

$$E^{(3)}(z)=\mathcal{A}e^{(2\mathcal{K}+\mathcal{K}^*)kz}\,. \tag{22}$$

Это, в свою очередь, позволяет записать решение для $\rho_{eg}^{(3)}(v)$:

$$\rho_{eg}^{(3)}(v)=\frac{id_{eg}f_M(v)\mathcal{A}e^{(2\mathcal{K}+\mathcal{K}^*)kz}}{\hbar[\gamma_0/2-i\delta+(2\mathcal{K}+\mathcal{K}^*)kv]}- \tag{23}$$
$$-\frac{i2d_{eg}\mathcal{E}|d_{eg}\mathcal{E}|^2f_M(v)e^{(2\mathcal{K}+\mathcal{K}^*)kz}}{\hbar^3|\gamma_0/2-i\delta+\mathcal{K}kv|^2[\gamma_0/2-i\delta+(2\mathcal{K}+\mathcal{K}^*)kv]}.$$

Подставляя (22) и (23) в левую и правую части волнового уравнения (20), находим выражение для амплитуды $\mathcal{A}$:

$$\mathcal{A}=\frac{i6\pi nk_0^{-3}\gamma_0\mathcal{E}|d_{eg}\mathcal{E}|^2}{\hbar^2[(2\mathcal{K}+\mathcal{K}^*)^2+1+F(\delta)]}\times \tag{24}$$
$$\times\left\langle\frac{f_M(v)}{|\gamma_0/2-i\delta+\mathcal{K}kv|^2[\gamma_0/2-i\delta+(2\mathcal{K}+\mathcal{K}^*)kv]}\right\rangle_v,$$

где

$$F(\delta)=i\left\langle\frac{3\pi nk_0^{-3}\gamma_0f_M(v)}{\gamma_0/2-i\delta+(2\mathcal{K}+\mathcal{K}^*)kv}\right\rangle_v. \tag{25}$$

Таким образом, мы можем записать выражение для поля с точностью до кубического (по $\mathcal{E}$) члена:

$$E(z)=E^{(1)}(z)+E^{(3)}(z)=\mathcal{E}e^{\mathcal{K}kz}+\mathcal{A}e^{(2\mathcal{K}+\mathcal{K}^*)kz}. \tag{26}$$

Рассмотрим оптическую среду длиной L $(0\le z\le L)$ при условии $kL\gg1$ (для того, чтобы исключить существенное влияние эффекта Дике [47] и других граничных эффектов [48]). Будем полагать, что на входе в среду $(z=0)$ величина поля равна E_0. В этом случае, из (26) получаем:

$$E(0)=E_0=\mathcal{E}+\mathcal{A}\;\Rightarrow\;\mathcal{E}=E_0-\mathcal{A}. \tag{27}$$

Наша задача теперь рассчитать спектроскопический сигнал на выходе из среды (при $z=L$), определяемый интенсивностью $I(L)\propto|E(L)|^2$:

$$|E(L)|^2=\left|(E_0-\mathcal{A})e^{\mathcal{K}kL}+\mathcal{A}e^{(2\mathcal{K}+\mathcal{K}^*)kL}\right|^2\approx \tag{28}$$
$$\approx|E_0|^2e^{2\mathrm{Re}\{\mathcal{K}\}kL}-2\mathrm{Re}\{\mathcal{A}E_0^*\}\big(e^{2\mathrm{Re}\{\mathcal{K}\}kL}-e^{4\mathrm{Re}\{\mathcal{K}\}kL}\big),$$

где мы пренебрегли малыми членами с $|\mathcal{A}|^2\propto|\mathcal{E}|^6$, так как члены этого порядка будут появляться также и от вклада $E^{(5)}$ (см. (11)), который мы в данной работе не учитываем. Далее, сохраняя такую же точность, мы можем положить $\mathcal{E}=E_0$ в выражении (24) для амплитуды $\mathcal{A}$, что, исходя из (28), приводит нас к окончательному выражению для спектроскопического сигнала пропускания:

$$I(L)\approx \tag{29}$$
$$\approx I(0)e^{2\mathrm{Re}\{\mathcal{K}\}kL}\big[1-3\pi nk_0^{-3}S_0\big(1-e^{2\mathrm{Re}\{\mathcal{K}\}kL}\big)U(\delta)\big],$$

где $I(0)\propto|E_0|^2$ есть интенсивность поля на входе в среду, $S_0=4|d_{eg}E_0/\hbar\gamma_0|^2\ll1$ есть малый параметр насыщения, а функция $U(\delta)$ определяется как:

$$U(\delta)= \tag{30}$$
$$=\mathrm{Re}\left\langle\frac{if_M(v)[(2\mathcal{K}+\mathcal{K}^*)^2+1+F(\delta)]^{-1}\gamma_0^3}{|\gamma_0/2-i\delta+\mathcal{K}kv|^2[\gamma_0/2-i\delta+(2\mathcal{K}+\mathcal{K}^*)kv]}\right\rangle_v.$$

Следует особо отметить, что аналитическое выражение (29) получено нами в рамках самосогласованного решения уравнений Максвелла–Блоха для любой оптической плотности среды, что ранее в научной литературе представлено не было.

В случае малой оптической плотности $|2\mathrm{Re}\{\mathcal{K}\}kL|\ll1$, из (29) получаем:

$$I(L)\approx I(0)\big[1+2\mathrm{Re}\{\mathcal{K}\}kL+6\pi nk_0^{-3}kLS_0\mathrm{Re}\{\mathcal{K}\}U(\delta)\big]. \tag{31}$$

Для сравнения, приведем хорошо известное выражение для оптически тонкой среды:

$$I(L) \approx I(0)\big[1 + D(\delta)kL + 6\pi n k_0^{-3} kLS_0 B(\delta)\big], \quad (32)$$

где функция $D(\delta)$, обычно именуемая в научной литературе контуром Фойгта, определяется как:

$$D(\delta) = -\frac{3}{2}\pi n k_0^{-3}\left\langle \frac{f_M(v)\gamma_0^2}{|\gamma_0/2 - i\delta + ikv|^2}\right\rangle_v, \quad (33)$$

а функция $B(\delta)$ есть:

$$B(\delta) = \frac{1}{8}\left\langle \frac{f_M(v)\gamma_0^4}{|\gamma_0/2 - i\delta + ikv|^4}\right\rangle_v. \quad (34)$$

Отметим, что вывод формул (32)–(34) основан на приближении, когда в уравнении на атомную матрицу плотности используется выражение для бегущей волны в вакууме:

$$E(z,t) = E_0 e^{-i\omega t + ikz} + \text{c.c.}, \quad (35)$$

а вместо (5) используется укороченное уравнение Максвелла:

$$\frac{\partial}{\partial z}\widetilde{E}(z) = 2i\pi k \widetilde{P}(z), \quad (36)$$

которое получается из (5) путем замены

$$E(z) = \widetilde{E}(z)e^{ikz}, \quad P(z) = \widetilde{P}(z)e^{ikz}, \quad (37)$$

и пренебрегая второй производной $\partial^2\widetilde{E}(z)/\partial z^2$ в левой части (36).

Следует отметить, что функции $D(\delta)$ и $B(\delta)$ являются четными по отстройке: $D(-\delta) = D(\delta)$ и $B(-\delta) = B(\delta)$. Однако, как показано в работе [46], форма линии доплеровского контура $\mathrm{Re}\{\mathcal{K}\}$ (см. (31)) испытывает существенную деформацию (асимметрия, сдвиг), что является следствием свободного движения атомов в самосогласованном решении уравнений Максвелла–Блоха. В частности, сдвиг вершины линейного по полю сигнала поглощения примерно равен $19nk_0^{-3}\gamma_0$, что отличается по знаку и более чем на порядок превышает сдвиг из-за межатомного диполь-дипольного взаимодействия (2). В этом контексте особый интерес представляет сравнение формы линии нелинейной поправки, полученной в нашем рассмотрении (см. выражение $\mathrm{Re}\{\mathcal{K}\}U(\delta)$ в (31)), с известным выражением (34). Как видно из рис. 2a, имеет место асимметрия формы линии и положительный сдвиг вершины резонанса, что обусловлено свободным движением атомов при самосогласованном описании в рамках системы уравнений Максвелла–Блоха. Более того, из численных расчетов нами установлено, что обнаруженный сдвиг для

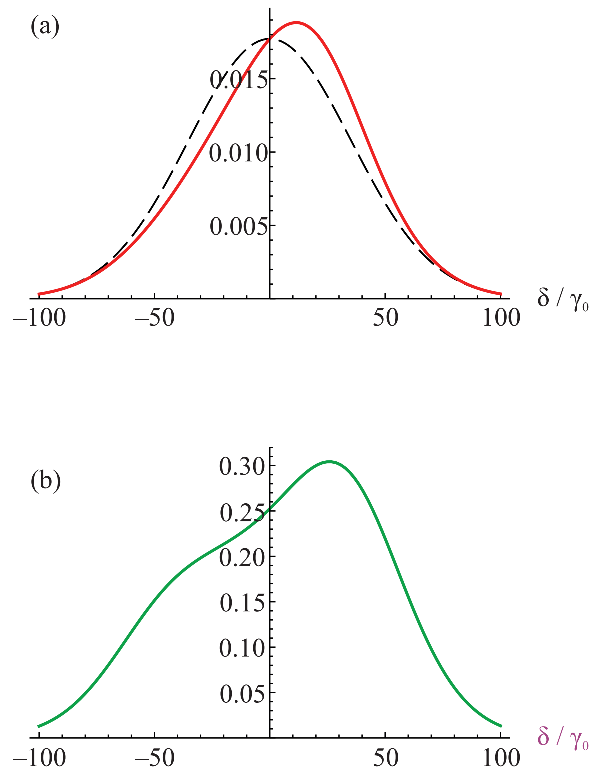


Рис. 2. (Цветной онлайн) Форма линии нелинейной поправки в сигнале пропускания (параметры расчета: $nk_0^{-3} = 0.01$, $k_0v_0/\gamma_0 = 50$). (a) – Случай оптически тонкой среды: частотная зависимость $\mathrm{Re}\{\mathcal{K}\}U(\delta)$ (красная сплошная линия), частотная зависимость $B(\delta)$ (черная штриховая линия). (b) – Частотная зависимость (39) для оптически толстой среды ($kL = 2\pi \times 35$)

нелинейной поправки в (31) в случае $k_0v_0/\gamma_0 \gg 1$ пропорционален доплеровскому фактору k_0v_0 и примерно равен

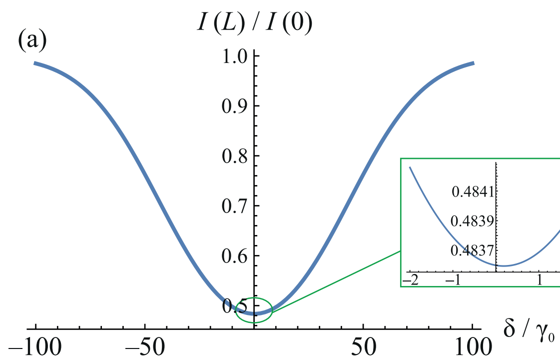
$$25nk_0^{-3}(k_0v_0) = 25nk_0^{-2}v_0\,, \quad (38)$$

что уже более чем на три порядка превышает эффект межатомного диполь-дипольного взаимодействия (2) при комнатных (и выше) температурах для подавляющего большинства атомных оптических переходов. Отметим, что мы намеренно использовали в расчетах зависимостей на рис. 2 относительно большую плотность атомов ($nk_0^{-3} = 0.01$) с целью заметной визуализации асимметрии и сдвига, обусловленных движением атомов, в масштабе всей формы линии.

В случае произвольной оптической толщины среды форма линии нелинейной поправки, как следует из (29), описывается общим выражением:

$$-3\pi nk_0^{-3}e^{2\mathrm{Re}\{\mathcal{K}\}kL}\big(1 - e^{2\mathrm{Re}\{\mathcal{K}\}kL}\big)U(\delta)\,. \quad (39)$$

На рисунке 2b приведен пример частотной зависимости (39), когда уровень полного поглощения в центре линии составляет около 50 %. Как видно, имеет место дополнительная деформация по отношению к оптически тонкой среде (см. рис. 2a), а положительный сдвиг вершины резонансного контура еще увеличился при той же плотности атомов.



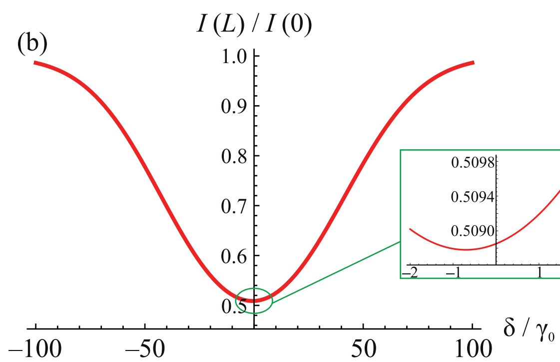


Рис. 3. (Цветной онлайн) Форма линии сигнала пропускания (параметры расчета: $nk_0^{-3} = 0.01$, $S_0 = 0.1$, $k_0 v_0/\gamma_0 = 50$, $kL = 2\pi \times 35$). (a) – Линейный по полю вклад $\exp(2\mathrm{Re}\{\mathcal{K}\}kL)$, где на вставке детально представлена центральная часть резонанса, сдвинутая вправо. (b) – Полный сигнал пропускания (29), где на вставке детально представлена центральная часть резонанса, сдвинутая влево

Таким образом, оба вклада в формуле (29) имеют положительный частотный сдвиг: как основной (линейный по полю) вклад, пропорциональный $\exp(2\mathrm{Re}\{\mathcal{K}\}kL)$ (см. рис. 3a), так и нелинейный вклад, пропорциональный выражению (39) (см. рис. 2b). Тем не менее, как показано на рис. 3b, вершина суммарной зависимости (29) может оказаться сдвинутой влево. Этот "графический" эффект зависит от величины параметра насыщения S_0 и обусловлен противоположной направленностью резонансных контуров на рис. 2b и 3a. Поэтому, важное значение имеет возможность экспериментального исследования формы линии (39) именно для нелинейной поправки, для которой положительный сдвиг вершины резонансной зависимости более чем на три порядка (см. (38)) превышает сдвиг из-за межатомного диполь-дипольного взаимодействия (2). Для экспериментальной реализации мы предлагаем применить известный метод, использующий относительно медленную гармоническую модуляцию входной интенсивности $I(0)$ на частоте f ($f \ll \gamma_0$), что приведет к следующей замене в формуле (29):

$$I(0) \to I_0[1 + a\sin(ft)], \quad S_0 \to S_0[1 + a\sin(ft)], \quad (40)$$

где a есть глубина модуляции. В результате, спектральная зависимость сигнала пропускания на второй гармонике ($2f$) будет определяться только интересующим нас нелинейным по полю вкладом, который пропорционален выражению (39).

Отметим, что нами был рассмотрен случай плоской монохроматической бегущей волны в бесконечном плоском слое толщиной L, когда атомы описываются стационарной матрицей плотности $\hat{\rho}(v)$, для которой производная по времени ($\partial/\partial t$) отсутствует в левой части уравнений (6). В случае ограниченного светового пучка с поперечным размером r применимость нашего подхода определяется условием

$$(r/v_0) \gg \gamma_0^{-1}, \quad (41)$$

где величина r/v_0 соответствует среднему времени пролета атомов через световой пучок, а γ_0^{-1} есть время выхода на стационарное состояние атомов, описываемое уравнениями (6). Обычно для дипольных оптических переходов имеет место $\gamma_0/2\pi > 1$ МГц, а наиболее вероятная скорость атомов при комнатных температурах (~ 300 K) составляет порядок $v_0 \sim$ ~ 100 м/с. Тогда неравенство (41) с очень большим запасом выполняется для $r \gtrsim 1$ мм и полностью соответствует типичным экспериментальным условиям ($r \sim 1$–10 мм) как для атомных газовых ячеек, так и для атомных пучков. Что касается степени немонохроматичности светового поля, то наш анализ применим в случае, когда ширина спектрального распределения меньше чем γ_0, что является вполне обычным для современных лазеров, используемых в прецизионной лазерной спектроскопии.

Следует также отметить, что представленные результаты получены для замкнутой двухуровневой модели, которая строго соответствует только реальному атомному переходу $J_g = 0 \to J_e = 1$, где J_g и J_e есть угловые моменты основного и возбужденного состояний соответственно. Поэтому дополнительная проблема заключается в выборе подходящего атома с таким переходом. Четные изотопы (с нулевым ядерным спином) атомов щелочноземельных металлов (например, Mg, Ca, Sr, Yb, Hg), которые имеют замкнутые оптические переходы $^1S_0 \to {}^1P_1$ и $^1S_0 \to {}^3P_1$, представляются наиболее подходящими. Однако температура плавления практически для всех этих элементов очень высока ($\sim$1000 K), что делает крайне затруднительным использование газовых ячеек. Единственным исключением являются четные изотопы $^{196\text{-}204}$Hg атома ртути (температура плавления 234 K) с удобным для наших целей интеркомбинационным переходом $^1S_0 \to {}^3P_1$ ($\lambda = 253.7$ нм, $\gamma_0/2\pi = 1.3$ МГц) [49, 50]. Тем не менее, при использовании атомных пучков можно выполнять спектроскопию для любых атомов указанной группы, посылая световую волну перпендикулярно атомному пучку.

В заключение, мы развили последовательную нелинейную по полю теорию доплеровской формы линии спектроскопического сигнала для бегущей монохроматической волны в газе двухуровневых атомов, основываясь на самосогласованном решении уравнений Максвелла–Блоха в приближении среднего поля и одноатомной матрицы плотности. В рамках этого подхода получены аналитические выражения для сигнала пропускания при произвольной оптической толщине газовой среды. Было обнаружено, что положительный частотный сдвиг нелинейного вклада в спектроскопический сигнал более чем на три порядка превосходит известный отрицательный сдвиг из-за межатомного диполь-дипольного взаимодействия. Несмотря на то, что обнаруженный сдвиг зависит от плотности атомов, этот огромный эффект обусловлен только свободным движением атомов в газе при самосогласованном описании в рамках уравнений Максвелла–Блоха и никак не связан с межатомным взаимодействием. Кроме того, следует отметить пропорциональную зависимость данного сдвига от доплеровской ширины линии, что весьма необычно и в научной литературе ранее не встречалось. Предложена экспериментальная схема, позволяющая отдельно исследовать форму линии только нелинейного по полю вклада. Помимо фундаментального аспекта, полученные результаты имеют принципиальную важность для прецизионной лазерной спектроскопии и оптических атомных часов.

Отметим также, что во многих современных теоретических расчетах (см., например, [24, 31, 32]) неоднородное доплеровское уширение линии описывают в рамках математической модели ансамбля неподвижных атомов, когда резонансная частота каждого атома смещена на случайную величину (в соответствии с распределением Гаусса) с нулевым средним значением и среднеквадратичным отклонением $k_0 v_0$. Однако следует особо подчеркнуть, что в данном стохастическом методе эффекты свободного движения атомов, обнаруженные нами, не могут быть учтены. Действительно, эти эффекты строго обусловлены наличием дифференциального оператора $(\mathbf{v} \cdot \nabla)$ в уравнении для матрицы плотности в сочетании с комплексностью волнового вектора (из-за поглощения волны в среде), что не может быть сведено только к доплеровскому сдвигу частоты для движущихся атомов.

В качестве дальнейшего развития нашего подхода можно отметить задачи распространения световых волн в газе атомов, с вырожденными по проекции углового момента энергетическими уровнями и наличием сверхтонкой структуры. В этом случае, при построении нелинейной по полю теории необходимо учитывать эффект перераспределения атомов по магнитным подуровням основного состояния (вследствие спонтанной релаксации возбужденного состояния), который отсутствует в рассмотренной нами модели двухуровневого атома. Кроме того, наш подход может быть обобщен для описания нелинейной внутри-доплеровской спектроскопии в случае встречных световых волн.

Мы благодарим за полезные дискуссии И. М. Соколова, В. Л. Величанского и С. А. Зиброва.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант # 22-72-10096). В. И. Юдин был поддержан Министерством науки и высшего образования Российской Федерации (грант # FSUS-2020-0036).

1. В. С. Летохов, В. П. Чеботаев, *Принципы нелинейной лазерной спектроскопии*, Наука, М. (1975) [V. S. Letokhov and V. P. Chebotayev, *Nonlinear Laser Spectroscopy*, Springer Ser. Opt. Sci., Springer, Berlin, Heidelberg (1977), v. 4].
2. С. Г. Раутиан, Г. И. Смирнов, А. М. Шалагин, *Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул*, Наука, М. (1979).
3. В. Демтредер, *Современная лазерная спектроскопия*, ИД Интеллект, Долгопрудный (2014) [W. Demtröder, *Laser Spectroscopy*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (2014)].
4. С. Стенхольм, *Основы лазерной спектроскопии*, Мир, М. (1987) [S. Stenholm, *Foundations of laser spectroscopy*, Wiley & Sons, N.Y. (1984)].
5. В. С. Летохов, В. П. Чеботаев, *Нелинейная лазерная спектроскопия сверхвысокого разрешения*, Наука, М. (1990).
6. F. Riehle, *Frequency Standards: Basics and Applications*, Wiley-VCH, Weinheim (2005).

7. J. Vanier and C. Tomescu, *The Quantum Physics of Atomic Frequency Standards*, CRC Press, Boca Raton, FL (2015).
8. R. Friedberg, S. Hartmann, and J. Manassah, Phys. Rep. **7**, 101 (1973).
9. E. Lewis, Phys. Rep. **58**, 1 (1980).
10. H. A. Lorentz, *The Theory of Electrons and Its Applications to the Phenomena of Light and Radiant Heat*, Dover, N.Y. (2011).
11. A. P. Kazantsev, Sov. Phys. JETP **24**, 1183 (1967).
12. Yu. A. Vdovin and V. M. Galitskii, Sov. Phys. JETP **25**, 894 (1967).
13. Yu. A. Vdovin and N. A. Dobrodeev, Sov. Phys. JETP **28**, 544 (1969).
14. R. P. Srivastava and H. R. Zaidi, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf. **16**, 301 (1976).
15. M. Fleischhauer and S. F. Yelin, Phys. Rev. A **59**, 2427 (1999).
16. S. Giovanazzi, A. Görlitz, and T. Pfau, Phys. Rev. Lett. **89**, 130401 (2002).
17. R. Löw, R. Gati, J. Stuhler, and T. Pfau, Europhys. Lett. **71**, 214 (2005).
18. T. Lahaye, C. Menotti, L. Santos, M. Lewenstein, and T. Pfau, Rep. Prog. Phys. **72**, 126401 (2009).
19. Ya. A. Fofanov, A. S. Kuraptsev, I. M. Sokolov, and M. D. Havey, Phys. Rev. A **84**, 053811 (2011).
20. R. Friedberg and J. T. Manassah, Phys. Rev. A **84**, 023839 (2011).
21. L. Weller, R. J. Bettles, P. Siddons, C. S. Adams, and I. G. Hughes, J. Phys. B **44**, 195006 (2011).
22. I. M. Sokolov, D. V. Kupriyanov, and M. D. Havey, JETP **112**, 246 (2011).
23. J. Keaveney, A. Sargsyan, U. Krohn, I. G. Hughes, D. Sarkisyan, and C. S. Adams, Phys. Rev. Lett. **108**, 173601 (2012).
24. J. Javanainen, J. Ruostekoski, Y. Li, and S.-M. Yoo, Phys. Rev. Lett. **112**, 113603 (2014).
25. J. Pellegrino, R. Bourgain, S. Jennewein, Y. R. P. Sortais, A. Browaeys, S. D. Jenkins, and J. Ruostekoski, Phys. Rev. Lett. **113**, 133602 (2014).
26. S. E. Skipetrov and I. M. Sokolov, Phys. Rev. Lett. **112**, 023905 (2014).
27. R. J. Bettles, S. A. Gardiner, and C. S. Adams, Phys. Rev. A **92**, 063822 (2015).
28. M. O. Scully, Phys. Rev. Lett. **115**, 243602 (2015).
29. A. A. Svidzinsky, F. Li, H. Li, X. Zhang, C. H. Raymond Ooi, and M. O. Scully, Phys. Rev. A **93**, 043830 (2016).
30. R. J. Bettles, S. A. Gardiner, and C. S. Adams, Phys. Rev. Lett. **116**, 103602 (2016).
31. S. D. Jenkins, J. Ruostekoski, J. Javanainen, R. Bourgain, S. Jennewein, Y. R. P. Sortais, and A. Browaeys, Phys. Rev. Lett. **116**, 183601 (2016).
32. S. D. Jenkins, J. Ruostekoski, J. Javanainen, S. Jennewein, R. Bourgain, J. Pellegrino, Y. R. P. Sortais, and A. Browaeys, Phys. Rev. A **94**, 023842 (2016).
33. A. S. Kuraptsev and I. M. Sokolov, Phys. Rev. A **94**, 022511 (2016).
34. M. Wenzel, F. Böttcher, T. Langen, I. Ferrier-Barbut, and T. Pfau, Phys. Rev. A **96**, 053630 (2017).
35. T. Peyrot, Y. R. P. Sortais, A. Browaeys, A. Sargsyan, D. Sarkisyan, J. Keaveney, I. G. Hughes, and C. S. Adams, Phys. Rev. Lett. **120**, 243401 (2018).
36. A. S. Kuraptsev and I. M. Sokolov, Phys. Rev. A **101**, 033602 (2020).
37. D. E. Chang, J. Ye, and M. D. Lukin, Phys. Rev. A **69**, 023810 (2004).
38. L. Ostermann, H. Zoubi, and H. Ritsch, Opt. Express **20**, 29634 (2012).
39. L. Ostermann, H. Ritsch, and C. Genes, Phys. Rev. Lett. **111**, 123601 (2013).
40. S. Krämer, L. Ostermann, and H. Ritsch, Europhys. Lett. **114**, 14003 (2016).
41. L. Henriet, J. S. Douglas, D. E. Chang, and A. Albrecht, Phys. Rev. A **99**, 023802 (2019).
42. A. A. Заболотский, ЖЭТФ **158**, 594 (2020).
43. А. И. Трубилко, А. М. Башаров, Письма в ЖЭТФ **111**, 798 (2020).
44. А. А. Бобров, С. А. Саакян, В. А. Саутенков, Б. Б. Зеленер, Письма в ЖЭТФ **114**, 604 (2021).
45. A. S. Kuraptsev and I. M. Sokolov, Phys. Rev. A **105**, 063513 (2022).
46. V. I. Yudin, A. V. Taichenachev, M. Yu. Basalaev, O. N. Prudnikov, and S. N. Bagayev, J. Opt. Soc. Am. B **39**, 1979 (2022).
47. R. H. Dicke, Phys. Rev. **89**, 472 (1953).
48. V. V. Batygin and I. M. Sokolov, Phys. Lett. A **108**, 29 (1985).
49. H. Dinesan, S. Gravina, C. Clivati, A. Castrillo, F. Levi, and L. Gianfrani, Metrologia **57**, 065001 (2020).
50. S. Gravina, C. Clivati, N. A. Chishti, A. Castrillo, E. Fasci, F. Bertiglia, G. Lopardo, A. Sorgi, N. Coluccelli, G. Galzerano, P. Cancio Pastor, F. Levi, and L. Gianfrani, J. Phys.: Conf. Ser. **2439**, 012015 (2023).