Письма в ЖЭТФ, том 62, вып.6, стр.460 - 465 © 1995г. 25 сентября

КОЛЛАПС СПЕКТРАЛЬНЫХ ЛИНИЙ ВСЛЕДСТВИЕ РАДИАЦИОННОЙ ИНДУЦИРОВАННОЙ ПЕРЕДАЧИ ПОЛЯРИЗАЦИИ

С.Г.Раутиан

Институт автоматики и электрометрии Сибирского отделения РАН
630090 Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 9 августа 1995 г.

Показано, что излучение с широким спектром, подобно столкновениям, может осуществлять обмен оптической когерентностью между переходами с близкими боровскими частотами. При достаточно высокой скорости такого обмена тесные спектральные структуры испытывают коллапс.

В работах [1,2] показано существование каскадной передачи поляризации как результата спонтанного процесса. Суть дела состоит в следующем. Рассмотрим, ради простоты и определенности, четыре атомных уровня m, n, m_1 и n_1 (см. рисунок) и будем полагать дипольно разрешенными переходы $m-n$, m_1-n_1, m_1-m и n_1-n, которые в спектре испускания или поглощения задают четыре линии с боровскими частотами ω_{mn}, $\omega_{m_1n_1}$, ω_{m_1n} и ω_{n_1n}. Допустим, что эти линии составляют пару тесных дублетов, то есть разности

$$\omega_{m_1n_1} - \omega_{mn} \cong \omega_{m_1m} - \omega_{n_1n} \equiv \Delta \qquad (1)$$

достаточно малы. В таких условиях взаимодействие с нулевыми колебаниями электромагнитного поля, помимо каскада частиц и магнитной когерентности, вызывает передачу оптической когерентности (поляризации) с одного перехода $(m_1 - n_1)$ на другой $(m - n)$.

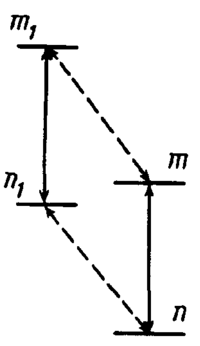

Рис.1

Возможность передачи когерентности с помощью типично стохастического механизма объясняется тем, что один и тот же полевой осциллятор вызывает смешивание как атомных волновых функций ψ_{m_1}, ψ_m, так и ψ_{n_1}, ψ_n, вследствие чего случайность фаз полевых осцилляторов не проявляется при суммировании по полевым модам. Существенное значение имеет лишь разность Δ боровских частот переходов, с которыми одновременно взаимодействует этот полевой осциллятор. В этом отношении очевидна аналогия с передачей когерентности в результате столкновений.

Е.В.Подивилов обратил мое внимание на возможность индуцированного аналога передачи поляризации. Действительно, приведенные соображения остаются в силе и в условиях, когда числа заполнения полевых мод отличны от нуля и спектр излучения достаточно широкий. Поэтому индуцированные процессы также должны приводить к обмену поляризациями между близкими спектральными линиями. Индуцированный обмен, в отличие от спонтанного [1, 2], имеет взаимный характер, вследствие чего он может вызвать коллапс спектральных дублетов (и вообще – тесных спектральных структур).

Будем применять обозначения согласно [3,4]. Кинетическое уравнение относительно одночастичной матрицы плотности ρ запишем в виде

$$(\partial/\partial t + \mathbf{v}\nabla)\rho = R + S - i(V\rho - \rho V), \tag{2}$$

где $\mathbf{v}$ – скорость атома, V – взаимодействие с внешним когерентным полем, S – интеграл столкновений, R – матрица радиационной релаксации. Последняя и будет интересовать нас. Пусть

$$G^{\lambda} = dE_{\lambda}/\hbar \tag{3}$$

есть оператор взаимодействия атома и λ-моды излучения с широким спектром, например, теплового излучения, в дипольном приближении (d – дипольный момент). Поле, ради простоты, будем описывать классически. С помощью стандартной методики (см., например, [3,4]), применяемой при анализе спонтанной релаксации, можно получить следующие выражения для элементов матрицы R:

$$R = -R^{(1)} + R^{(2)}, \tag{4}$$

$$R^{(1)}_{mn} = \frac{1}{2}(\Gamma_m + \Gamma_n)\rho_{mn} + \pi\sum_{\mathbf{k}}\frac{d\lambda}{d\omega}(G^{\lambda}_{mm_1}G^{\lambda}_{m_1m}\rho_{mn} + \rho_{mn}G^{\lambda}_{nn_1}G^{\lambda}_{n_1n}), \tag{5}$$

$$R^{(2)}_{mn} = A_{mnm_1n_1}\rho_{m_1n_1}e^{-i\Delta t} + 2\pi\sum_{\mathbf{k}}\frac{d\lambda}{d\omega}G^{\lambda}_{mm_1}\rho_{m_1n_1}G^{\lambda}_{n_1n}e^{-i\Delta t}. \tag{6}$$

Все величины, кроме скоростей спонтанной релаксации Γ_j, являются матрицами по отношению к магнитным числам:

$$(\rho_{mn})_{MM'} = \rho(mMnM'), \qquad (\rho_{m_1n_1})_{M_1M_1'} = \rho(m_1M_1n_1M_1'), \tag{7}$$

$$(R^{(i)}_{mn})_{MM'} = R^{(i)}(mMnM'), \quad i = 1, 2, \tag{8}$$

$$(G^{\lambda}_{m_1m})_{M_1M} = \frac{d_{m_1m}}{2\sqrt{3}\hbar}\sum_{\sigma}(-1)^{J_m - M} < J_{m_1}M_1J_m - M|1\sigma > E^{\lambda}_{\sigma}, \tag{9}$$

$$(G^{\lambda}_{n_1n})_{M_1'M'} = \frac{d_{n_1n}}{2\sqrt{3}\hbar}\sum_{\sigma}(-1)^{J_n - M'} < J_{n_1}M_1'J_n - M'|1\sigma > E^{\lambda}_{\sigma}, \tag{10}$$

$$A(mMnM'|m_1M_1n_1M_1') = \sqrt{A_{m_1m}A_{n_1n}}\sum_{\sigma} < J_mM1\sigma|J_{m_1}M_1 >< J_nM'1\sigma|J_{n_1}M_1' > . \tag{11}$$

Здесь d_{ij} – приведенные матричные элементы дипольного момента для переходов $i-j$, A_{ij} – коэффициенты Эйнштейна для спонтанного испускания, J и M – моменты и магнитные числа стационарных состояний атома, $<...|...>$ – коэффициенты векторного сложения, E_σ^λ – круговые компоненты напряженности λ-моды излучения. В выражениях (5) и (6) уже выполнено интегрирование по частотам λ-мод. Суммы по $\mathbf{k}$ обозначают суммирование по направлениям их распространения. Нумерация уровней принята в соответствии с рисунком, так что

$$\omega_{m_1 m} > 0, \qquad \omega_{n_1 n} > 0, \qquad \omega_{mn} > 0, \qquad \omega_{m_1 n_1} > 0. \tag{12}$$

Согласно формуле (5), член ухода матрицы радиационной релаксации $R_{mn}^{(1)}$ содержит спонтанное затухание и сумму по $\mathbf{k}$, связанную с обеднением уровней m, n из-за вынужденных переходов (поглощения) $m \to m_1$, $n \to n_1$ под действием излучения с непрерывным спектром. Эти эффекты хорошо известны. Член прихода $R_{mn}^{(2)}$ слагается из спонтанного каскада поляризации, рассмотренного в [1,2] (первый член в правой части равенства (6)), и индуцированного каскада, который и представляет для нас основной интерес.

Выражения для $R_{m_1 n_1}$ получается из формул (5), (6) заменой индексов, но без спонтанной составляющей в $R_{m_1 n_1}^{(2)}$ (в силу (12)):

$$R_{m_1 n_1}^{(1)} = \frac{1}{2}(\Gamma_{m_1} + \Gamma_{n_1})\rho_{m_1 n_1} + \pi \sum_{\mathbf{k}} \frac{d\lambda}{d\omega}(G_{m_1 m}^\lambda G_{m m_1}^\lambda \rho_{m_1 n_1} + \rho_{m_1 n_1} G_{n_1 n}^\lambda G_{n n_1}^\lambda), \tag{13}$$

$$R_{m_1 n_1}^{(2)} = 2\pi \sum_{\mathbf{k}} \frac{d\lambda}{d\omega} G_{m_1 m}^\lambda \rho_{mn} G_{n n_1}^\lambda e^{i\Delta t}. \tag{14}$$

Как и отмечалось, в отличие от спонтанного, индуцированный радиационный обмен поляризациями происходит не только "сверху вниз" $(m_1 n_1 \to mn)$, но и "снизу вверх" $(mn \to m_1 n_1)$.

Аналогичный вид имеют матричные элементы R_{jj}, описывающие радиационный уход и приход для уровней $j = m$, m_1, n и n_1. Они содержат в себе эффекты спонтанного и индуцированного обмена заселенностями и магнитными когерентностями (см., например, [3-6]).

Выписанные выражения для R предполагают отсутствие внешних статических полей и вырождение стационарных состояний атома. В противном случае энергия M-подуровня зависит от магнитного числа, и величины Δ в формулах (6), (14) зависят от M, M_1 и так далее по известным законам (эффекты Зеемана и Штарка, см., например, [7]). В остальном равенства (5)-(14) сохраняют силу.

Выше предполагалось также, что излучение с широким спектром квазирезонансно только переходам $m_1 - m$, $n_1 - n$. Если указанное излучение смешивает состояния m_1, m, n_1 и n с иными уровнями, то в формулах (5), (6), (13) и (14) должно фигурировать суммирование по всем взаимодействующим состояниям.

Индуцированная радиационная релаксация существенно зависит от степени поляризованности и направленности "шумового" излучения. Конкретизируем выписанные соотношения для изотропного неполяризованного излучения. В этом случае поле можно охарактеризовать объемной спектральной плотностью энергии

$$U_\omega = \frac{1}{8\pi} \sum_{\sigma \mathbf{k}} |E_\sigma^\lambda|^2 \frac{d\lambda}{d\omega}, \tag{15}$$

и матрица R существенно упрощается. При изотропном возмущении атома особенно удобно так называемое κq-представление:

$$\rho(JM \cdot J'M') = \sum_{\kappa q} (-1)^{J'-M'} < JMJ' - M'|\kappa q > \rho(JJ'\kappa q),$$

$$\rho(JJ'\kappa q) = \sum_{MM'} (-1)^{J'-M'} < JMJ' - M'|\kappa q > \rho(JMJ'M'). \tag{16}$$

В этом представлении при изотропном излучении элементы $R(J_m J_n \kappa q)$, $R(J_{m_1} J_{n_1} \kappa q)$ матрицы R имеют вид

$$E^{(1)}(J_m J_n \kappa q) = [1/2(\Gamma_m + \Gamma_n) + \nu_{mn}]\rho(J_m J_n \kappa q), \tag{17}$$

$$R^{(2)}(J_m J_n \kappa q) = [A(mn|m_1 n_1, \kappa) + \tilde{\nu}(mn|m_1 n_1, \kappa)]\rho(J_{m_1} J_{n_1} \kappa q) e^{-i\Delta t}, \tag{18}$$

$$R^{(1)}(J_{m_1} J_{n_1} \kappa q) = [1/2(\Gamma_{m_1} + \Gamma_{n_1}) + \nu_{m_1 n_1}]\rho(J_{m_1} J_{n_1} \kappa q), \tag{19}$$

$$R^{(2)}(J_{m_1} J_{n_1} \kappa q) = \tilde{\nu}(m_1 n_1|mn, \kappa)\rho(J_m J_n \kappa q) e^{i\Delta t}, \tag{20}$$

где величины ν_{ij} и $\tilde{\nu}(mn|m_1 n_1, \kappa)$ определяются соотношениями

$$\nu_{mn} = 1/2(B_{mm_1} + B_{nn_1})U_\omega, \qquad \nu_{m_1 n_1} = 1/2(B_{m_1 m} + B_{n_1 n})U_\omega, \tag{21}$$

$$A(mn|m_1 n_1, \kappa) = \sqrt{A_{m_1 m} A_{n_1 n}} K_\kappa,$$

$$K_\kappa = (-1)^{1+\kappa+J_m+J_{n_1}} \sqrt{2J_{m_1}+1}\sqrt{2J_{n_1}+1} \begin{Bmatrix} J_m J_n \kappa \\ J_{n_1} J_{m_1} 1 \end{Bmatrix}, \tag{22}$$

$$\tilde{\nu}(mn|m_1 n_1, \kappa) = C^*_{m_1 m} C_{n_1 n} U_\omega K_\kappa = \tilde{\nu}(m_1 n_1|mn, \kappa). \tag{23}$$

Здесь $\{...\}$ обозначает $6j$-символ, а

$$C_{ij} = \frac{2\pi}{3} \frac{d_{ij}}{\hbar\sqrt{2J_i + 1}}, \qquad B_{ij} = |C_{ij}|^2. \tag{24}$$

Величины B_{ij} представляет собой коэффициенты Эйнштейна для вынужденного испускания на переходе $i - j$ [7].

В соответствии с общими соображениями, связанными с изотропией возмущения атома [8], частоты ухода ν_{mn} и $\nu_{m_1 n_1}$ не зависят от κ, в отличие от частот прихода $\tilde{\nu}$, которые демонстрируют такую зависимость. Отметим также структурную аналогию матрицы R, определяемой формулами (17)–(20), и интеграла столкновений (см. [3,4]). В случае анизотропного возмущения аналогия с интегралом столкновений сохраняется, но выражения для элементов матрицы R становятся более сложными (типа матрицы накачки [6]).

Рассмотрим теперь контур дублета в спектре поглощения слабого монохроматического поля в области ω_{mn}, $\omega_{m_1 n_1}$ при воздействии на атом изотропного радиационного возмущения. Упростим обозначения:

$$\rho_q \equiv \rho(J_m J_n 1q), \qquad \Gamma \equiv (\Gamma_m + \Gamma_n)/2, \qquad \nu \equiv \nu_{mn}, \qquad \Omega = \omega - \omega_{mn},$$

$$\rho_{1q} \equiv \rho(J_{m_1}J_{n_1}1q), \qquad \Gamma_1 \equiv (\Gamma_{m_1}+\Gamma_{n_1})/2, \qquad \nu_1 \equiv \nu_{m_1 n_1}, \qquad \Omega_1 = \Omega - \Delta, \tag{25}$$
$$A \equiv A(mn|m_1n_1,1), \qquad \tilde\nu \equiv \tilde\nu(mn|m_1n_1,1).$$

Уравнения для недиагональных элементов ρ_q, ρ_{1q} имеют вид

$$(\Gamma+\nu-i\Omega)\rho_q - (A+\tilde\nu)\rho_{1q} = iG_qN, \qquad G_q = d_{mn}\mathcal{E}_q/2\sqrt{3}\hbar,$$
$$(\Gamma_1+\nu_1-i\Omega_1)\rho_{1q} - \tilde\nu\rho_q = iG_{1q}N_1, \qquad G_{1q} = d_{m_1n_1}\mathcal{E}_q/2\sqrt{3}\hbar, \tag{26}$$

где $\mathcal{E}_q$ – круговые компоненты монохроматического поля, N и N_1 – разности заселенностей магнитных подуровней в состояниях n,m и n_1 и m_1. В отсутствие изотропного облучения $\tilde\nu=0$ и система уравнений (26) расцепляется, то есть обмен поляризацией идет "в одну сторону", каскадно. Это случай работы [2]. Если $U_\omega \neq 0$, $\tilde\nu \neq 0$, обмен поляризациями переходов $m-n$, m_1-n_1 становится взаимным и контур дублета может существенно измениться. В данном отношении индуцированный обмен когерентностями вполне аналогичен столкновительному, который может привести к коллапсу дублета (см., например, [9]). В нашем случае существуют некоторые интересные особенности, которые оправдывают последующий, почти стандартный анализ.

Коэффициент поглощения $\alpha(\Omega)$ пропорционален работе поля:

$$\alpha(\Omega) \propto -\mathrm{Re}\, i\sum_q (G_q^*\rho_q + G_{1q}^*\rho_{1q}),$$

и в нашем случае его можно представить в виде суммы двух лоренцианов,

$$\alpha(\Omega) \propto \mathrm{Re}\left[\frac{C_1}{\gamma_1 - i(\Omega-\Delta/2)} - \frac{C_2}{\gamma_2 - i(\Omega-\Delta/2)}\right], \tag{27}$$

с комплексными параметрами γ_1, C_1 и γ_2, C_2. С помощью решений системы (26) выражение (27) допускает анализ при произвольных значениях параметров. Мы рассмотрим простейший случай, когда

$$\Gamma=\Gamma_1, \qquad \nu=\nu_1, \qquad N=N_1, \qquad G_q=G_{1q} \tag{28}$$

и интерференционные явления оказываются наиболее яркими. При выполнении условий (28) находим

$$\gamma_{1,2} = \Gamma+\nu\mp D, \qquad 2C_{1,2} = (\tilde\nu + A/2 \pm D)/D, \qquad D=\sqrt{\tilde\nu(\tilde\nu+A)-\Delta^2/4}. \tag{29}$$

Если $\tilde\nu=0$, то $D=i\Delta/2$ и выражение (27) описывает дублет с интерференционной структурой [2]. С ростом $\tilde\nu$ компоненты дублета начинают сближаться, и если $\tilde\nu$ достаточно велика,

$$2\tilde\nu > \sqrt{\Delta^2+A^2} - A = \Delta^2/(\sqrt{\Delta^2+A^2}+A), \tag{30}$$

то $\mathrm{Im}D=0$ и формула (27) отражает коллапс дублета: оба лоренциана обладают одинаковой центральной частотой $\Omega-\Delta/2=0$ и различными полуширинами γ_1,γ_2. Лоренциан с меньшей полушириной γ_1 имеет бóльшую амплитуду (положительную), лоренциан с бóльшей полушириной γ_2 – меньшую по модулю, отрицательную амплитуду. При $\tilde\nu \gg |\Delta|+A$ находим

$$\gamma_1 = \Gamma+\nu-\tilde\nu-A/2, \quad C_1\approx 1, \quad \gamma_2=\Gamma+\nu+\tilde\nu+A/2, \quad C_2=(\Delta^2+A^2)/8\tilde\nu^2 \ll 1. \tag{31}$$

Таким образом, интенсивный обмен поляризацией формирует из дублета одиночную узкую линию, ширина которой при $\nu = \tilde{\nu}$ не зависит от ν. Замечательно, что частично компенсируется и спонтанная ширина $(\Gamma - A/2)$. Последнее обстоятельство связано, очевидно, с тем, что передача когерентности с перехода $m_1 - n_1$ на переход $m - n$ осуществляется и вынужденно, и спонтанно. Последующая передача поляризации обратно $(m - n \to m_1 - n_1)$ увеличивает эффективное время жизни когерентности и, следовательно сужает линию. Уменьшение минимальной полуширины γ_1 коллапсировавшей линии по сравнению со спонтанной полушириной Г отличает коллапсы из-за радиационного и столкновительного обмена: в последнем случае минимальной служит спонтанная полуширина Г.

Итак, внешнее поле с широким спектром вызывает разнообразные процессы: переходы частиц и магнитной когерентности, передача оптической когерентности. Индуцированная передача когерентности, как и ее спонтанный аналог, не связана с изменением энергии атома и поля. Подобно столкновительному варианту, индуцированная передача когерентности протекает в обоих направлениях $(m - n \leftrightarrow m_1 - n_1)$, что может привести, в частности, к коллапсу спектральных структур.

Выше рассмотрен случай, когда радиационные процессы $m_1 \leftrightarrow m$ и $n_1 \leftrightarrow n$ осуществляют передачу поляризации переходов $m_1 - n_1$ и $m - n$, разрешенных в дипольном приближении. Вполне аналогично протекает передача когерентности и в тех случаях, когда переходы $m_1 - n_1$ и $m - n$ запрещены.

Тесные спектральные структуры, склонные к коллапсу, должны быть сравнительно редки в линейчатых спектрах атомов с относительно малым числом линий. Однако в спектрах атомов с достраивающимися d- и f-оболочками число линий очень велико и вероятность случайных совпадений должна быть не очень малой. Тем более это относится к молекулярным спектрам с развитой вращательно-колебательной структурой и к переходам между ридберговскими состояниями. Отметим кстати, что для ридберговских состояний типичным является существенное влияние вынужденных переходов из-за теплового излучения на их времена жизни [10].

Работа выполнена при поддержке Программ "Оптика. Лазерная физика" и "Российские университеты".

1. С.Г.Раутиан, Письма в ЖЭТФ **60**, 462 (1994).
2. С.Г.Раутиан, Письма в ЖЭТФ **61**, 461 (1995).
3. С.Г.Раутиан, Г.И.Смирнов, А.М.Шалагин, *Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул*, Новосибирск: Наука, 1979.
4. S.G.Rautian, A.M.Shalagin, *Kinetic Problems of Nonlinear Spectroscopy*, North-Holland Publ., Oxford-Amsterdam, 1991.
5. М.П.Чайка, *Интерференция вырожденных атомных состояний*, Л.: Изд. ЛГУ, 1975.
6. Е.Б.Александров, Г.И.Хвостенко, М.П.Чайка, *Интерференция атомных состояний*, М.: Наука, 1991.
7. И.И.Собельман, *Введение в теорию атомных спектров*, М.: Наука, 1979.
8. М.И.Дьяконов, В.И.Перель, ЖЭТФ **47**, 1483 (1964).
9. Л.А.Вайнштейн, И.И.Собельман, Е.А.Юков, *Возбуждение атомов и уширение спектральных линий*, М.: Наука, 1979.
10. *Ридберговские состояния атомов и молекул*. Под ред. Р.Стеббингса и Ф.Даннинга, М.: Мир, 1985.