

СПЕКТРЫ ФЛУОРЕСЦЕНЦИИ И ПОГЛОЩЕНИЯ  
Λ-СИСТЕМЫ В УСЛОВИЯХ РАМАНОВСКОГО  
РЕЗОНАНСА

И. В. Баргатин, Б. А. Гришанин  
Физический Факультет и Международный Лазерный центр,  
Московский Государственный Университет им. М. В. Ломоносова, Москва, 119899

1999

### Аннотация

Получены аналитические формулы, описывающие спектры флуоресценции и поглощения  $\Lambda$ -системы в условиях рамановского резонанса для неравных интенсивностей полей и ненулевой однофотонной расстройке в приближении вращающихся волн и асимптотике насыщающего поля. Показано, что помимо группы лоренцевских линий в спектрах присутствует знакопеременная нелоренцевская часть, обусловленная квантовой спецификой динамики  $\Lambda$ -системы, которая имеет принципиальное значение для адекватного объяснения важных физических особенностей, таких как характер спадания крыльев спектра, положение максимумов спектральных линий и поведение коэффициента поглощения пробного поля вблизи лазерных частот. Рассмотрено соотношение между теоретическими моделями, описывающими случаи стационарной и нестационарной динамики формирования отклика индивидуальных атомов, и обоснована возможность универсального использования феноменологической стационарной модели.

## Введение

Одним из самых интересных и активно исследуемых (см. обзоры [1, 2]) явлений, характерных для трехуровневых систем, является когерентное пленение населенностей (КПН). Эффект КПН наиболее ярко проявляется в  $\Lambda$ -конфигурации трехуровневых систем, где дипольно разрешенными являются переходы между верхним и каждым из двух нижних уровней системы (см. рис. 1). При возбуждении такой системы двумя лазерами с частотами  $\omega_L$ ,  $\omega'_L$  в условиях рамановского резонанса  $\delta_R = \omega'_L - \omega_L - \omega_{12} = 0$ , где  $\delta_R$  — рамановская (двухфотонная) расстройка и  $\omega_{12}$  — частота перехода между двумя нижними уровнями, практически вся населенность оказывается сосредоточенной в когерентной суперпозиции двух нижних состояний (“темном” состоянии), не взаимодействующей с лазерным полем. При перестройке частоты вблизи рамановского резонанса КПН, в частности, проявляется как узкий провал в графиках зависимости коэффициента поглощения и интенсивности флуоресценции.

При исследовании спектров резонансной флуоресценции и поглощения пробного поля возможны три различных реализации экспериментальных установок, требующие различных теоретических описаний. В первой атомарный газ активного вещества находится в кювете вместе с буферным газом [3, 4], столкновения с которым определяют упругую дефазировку активных атомов. Так как уровни  $|1\rangle$  и  $|2\rangle$  в  $\Lambda$ -системе имеют одинаковую четность и переходы между ними в дипольном приближении запрещены, соответствующие радиационные релаксационные параметры пренебрежимо малы и существенным релаксационным процессом являются лишь столкновения с атомами буферного газа и стенками кюветы. Таким образом, если пренебречь влиянием столкновений на распад населенностей двух нижних уровней, то единственным релаксационным параметром, учет которого необходим для построения правильной теории, является скорость упругой дефазировки  $\Gamma_{12}$ . В таких условиях, как показано ниже, интенсивность флуоресценции пропорциональна  $\Gamma_{12}$ , поскольку атом в процессе излучения находится в стационарном состоянии, отличном от темного лишь для  $\Gamma_{12} \neq 0$ .

Во втором варианте экспериментальной установки буферный газ отсутствует [5] и характерное время упругой дефазировки перехода  $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ , обусловленной столкновениями в чистых парах активных атомов, много больше времени пролета через пучок лазерного поля. В этом случае определяющую роль играет временная зависимость ча-

стот Раби, входящих в лиувиллиан, и состояние отдельного атома уже нельзя описывать стационарной матрицей плотности. В третьем варианте реализации эксперимента создается пучок активных атомов, взаимодействующий с пучком лазерного поля в области их пересечения [6]. Отличие этого варианта от предыдущего заключается в жесткой фиксации скорости атомов и, таким образом, отстройке частот лазерного поля. Это приводит к отсутствию доплеровского уширения, что делает данный вариант более простым для теоретического описания.

В данной статье решается задача аналитического расчета спектров флуоресценции и поглощения  $\Lambda$ -системы в условиях рамановского резонанса и непрерывного действия лазерных полей. Для первых двух вариантов реализации экспериментальной установки расчет реально наблюдаемых спектров необходимо проводить с учетом доплеровского сдвига  $\delta \rightarrow \delta + \mathbf{k}\mathbf{v}$ , где  $\mathbf{k}$  — волновой вектор и  $\mathbf{v}$  — скорость атома. Помимо этого остаточный двухфотонный доплеровский сдвиг  $\delta_R \rightarrow \delta_R + (\mathbf{k}_L - \mathbf{k}'_L)\mathbf{v}$  может привести к тому, что для части атомов в кювете не будут выполняться условия рамановского резонанса, что сделает неприменимым приведенное ниже теоретическое описание. Однако при достаточно интенсивных полях накачки ширина рамановского резонанса существенно возрастает [7] и может быть достаточно велика для того, чтобы все взаимодействующие с лазерным полем атомы эффективно находились в условиях рамановского резонанса. Рассчитываемые здесь результаты описывают спектры резонансной флуоресценции *отдельных* атомов лишь для случая сильных полей, когда обобщенная частота Раби много больше однофотонной расстройки. Если такое условие выполняется для всех атомов в ячейке, наблюдаемый спектр можно рассчитать усреднением спектров отдельных атомов по доплеровскому распределению скоростей атомов в кювете. В третьем варианте экспериментальной реализации для хорошо коллимированных атомных пучков расстройка  $\delta$  для всех атомов одинакова и наблюдаемый спектр совпадает со спектром отдельного атома.

Для стационарной теории, соответствующей первому варианту реализации эксперимента, получены аналитические формулы, описывающие спектр мощности флуоресценции и зависимость коэффициента поглощения от частоты пробного поля в рамках приближения вращающихся волн (ПВВ) в пределе насыщающего поля. Рассмотрены случаи неравных интенсивностей полей и ненулевой однофотонной расстройки, обобщающие результаты [8]. Качественно новым элементом расчета является учет нелоренцев-

ского вклада, позволяющий выявить важные особенности крыльев спектра флуоресценции и поведения коэффициента поглощения вблизи лазерных частот.

Для второго и третьего варианта реализации эксперимента получены формулы для спектра флуоресценции, основанные на динамической теории, соответствующей пролету атомов через лазерный пучок с прямоугольным профилем интенсивности, и проанализировано соответствие результатов стационарной и динамической теорий.

## 1. Лиувиллиан $\Lambda$ -системы в приближении вращающихся волн

Гамильтониан рассматриваемой системы, возбуждаемой двумя лазерными полями, представляется в форме

$$\hat{\mathcal{H}} = -\hbar\omega_{12} |2\rangle \langle 2| + \hbar\omega_{13} |3\rangle \langle 3| + \hbar g \cos(\omega_L t + \varphi) |1\rangle \langle 3| + \hbar g' \cos(\omega'_L t + \varphi') |2\rangle \langle 3| + \text{э. с.}, \quad (1)$$

где энергия уровня  $|1\rangle$  принята за нуль, так что проекционный оператор  $|1\rangle \langle 1|$  в гамильтониане отсутствует. Константы взаимодействия  $g$  и  $g'$ , т. е. частоты Раби, зависят от амплитуд  $\vec{A}_{\omega_L}$ ,  $\vec{A}_{\omega'_L}$  внешнего поля и от дипольных матричных элементов  $\vec{d}_{13}$ ,  $\vec{d}_{23}$ :  $g = \frac{1}{\hbar} \vec{d}_{13} \vec{A}_{\omega_L}$ ,  $g' = \frac{1}{\hbar} \vec{d}_{23} \vec{A}_{\omega'_L}$ . Интерес представляет лишь случай наличия однофотонных резонансов, когда  $\omega_L$  и  $\omega'_L$  близки к  $\omega_{13}$  и  $\omega_{23}$ , соответственно. Тогда, переходя к представлению взаимодействия, в котором невозмущенная динамика описывается унитарным преобразованием  $\mathcal{U}_0(t) = \exp[-(i/\hbar)(\hbar\omega_L |3\rangle \langle 3| - \hbar\Delta |2\rangle \langle 2|)t]$ , где  $\Delta = \omega'_L - \omega_L \approx \omega_{12}$  — бигармоническая частотная расстройка, в рамках ПВВ [9] мы пренебрегаем быстро осциллирующими членами в  $\hat{\mathcal{H}}_\Lambda = \mathcal{U}_0^{-1}(t) \hat{\mathcal{H}} \mathcal{U}_0(t)$ , так что гамильтониан (1) принимает вид

$$\hat{\mathcal{H}}_\Lambda = \hbar \left[ -\delta |3\rangle \langle 3| + \delta_R |2\rangle \langle 2| + \left( \frac{g}{2} |1\rangle \langle 3| + \frac{g'}{2} |2\rangle \langle 3| + \text{э. с.} \right) \right], \quad (2)$$

где  $\delta = \omega_L - \omega_{13}$ ,  $\delta_R = \omega'_L - \omega_L - \omega_{12}$  описывают однофотонную расстройку для перехода  $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$  и двухфотонную рамановскую расстройку соответственно.

С учетом полученного представления ПВВ-гамильтониана соответствующая ему динамическая часть лиувиллиана имеет вид  $\mathcal{L}_\Lambda = (i/\hbar) [\hat{\mathcal{H}}_\Lambda, \odot]$ , а полный лиувиллиан  $\mathcal{L}_{\text{RWA}}$  включает релаксационный оператор. В случае симметричной  $\Lambda$ -системы  $\gamma' = \gamma$ ,  $\Gamma' = \Gamma$  и при условии рамановского резонанса  $\delta_R = 0$  в эрмитовом базисе  $\{\hat{e}_k\} = \{|3\rangle \langle 3|, |1\rangle \langle 1|, |2\rangle \langle 2|, (|1\rangle \langle 2| + |2\rangle \langle 1|)/\sqrt{2}, -i(|1\rangle \langle 2| - |2\rangle \langle 1|)/\sqrt{2}, (|1\rangle \langle 3| + |3\rangle \langle 1|)/\sqrt{2}, -i(|1\rangle \langle 3| - |3\rangle \langle 1|)/\sqrt{2}, (|2\rangle \langle 3| + |3\rangle \langle 2|)/\sqrt{2}, -i(|2\rangle \langle 3| - |3\rangle \langle 2|)/\sqrt{2}\}$  получаем

$$\mathcal{L}_{\text{RWA}} = \begin{pmatrix} -2\gamma & \gamma & \gamma & 0 & 0 & 0 & g/\sqrt{2} & 0 & g'/\sqrt{2} \\ 0 & -\gamma_{12} & \gamma_{12} & 0 & 0 & 0 & -g/\sqrt{2} & 0 & 0 \\ 0 & w & -w & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -g'/\sqrt{2} \\ 0 & 0 & 0 & -\Gamma_{12} & 0 & 0 & -g'/2 & 0 & -g/2 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -\Gamma_{12} & g'/2 & 0 & -g/2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -g'/2 & -\Gamma & \delta & 0 & 0 \\ -g/\sqrt{2} & g/\sqrt{2} & 0 & g'/2 & 0 & -\delta & -\Gamma & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & g/2 & 0 & 0 & -\Gamma & \delta \\ -g'/\sqrt{2} & 0 & g'/\sqrt{2} & g/2 & 0 & 0 & 0 & -\delta & -\Gamma \end{pmatrix} \quad (3)$$

Здесь  $\gamma$  — скорость распада населенности уровня  $|3\rangle$  на каждый из уровней  $|1\rangle$  и  $|2\rangle$ ;  $\Gamma$  — скорость дефазировки переходов  $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$  и  $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ ,  $\Gamma_{12}$ ,  $\gamma_{12}$ ,  $w$  — скорости дефазировки, распада и некогерентной накачки в системе нижних уровней  $|1\rangle$  и  $|2\rangle$ . Величина  $\Gamma_{12}$  может описывать как столкновительную дефазировку, так и другие эквивалентные механизмы, например, нестабильность фазы лазерной накачки.

## 2. Расчет спектров флуоресценции

Спектральная плотность излучения возбужденного атома определяется нормально упорядоченной двухвременной корреляционной функцией излученного атомом света [10, 11]. Предполагая марковость атомных флуктуаций, т. е. независимость шума в моменты времени  $t$  и  $t + \tau$ , можно записать корреляционную функцию в виде [12]:

$$\mathcal{K}(\tau) = \langle \hat{\rho}_0 S(0, t) | \hat{\sigma}^-(t) [S(t, t + \tau) \hat{\sigma}^+(t + \tau)] \rangle, \quad (4)$$

где  $\hat{\sigma}^\pm(t)$  — положительно/отрицательно частотные операторы Гейзенберга атомных переходов  $|k\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ ,  $k = 1, 2$ . Супероператоры  $S(t_1, t_2) = \text{T exp} \left[ \int_{t_1}^{t_2} \mathcal{L}(\tau) d\tau \right]$ , где T — символ временного упорядочения, описывают релаксацию и взаимодействие атома с возбуждающими лазерными полями в интервалы времени  $(0, t)$  и  $(t, t + \tau)$ , соответственно, а  $\hat{\rho}_0 S(0, t)$  представляет матрицу плотности  $\hat{\rho}(t)$  в момент времени  $t$ . Спектр излучения может быть вычислен как Фурье-преобразование корреляционной функции (4) (см. рис. 2а).

### 2.1. Стационарная теория спектров флуоресценции

В стационарной теории матрица плотности в векторном представлении является нулевым вектором  $\langle 0|$  матрицы (3) ПВВ-лиувиллиана  $\mathcal{L}_{RWA}$ . Описывая динамику  $\Lambda$ -системы с помощью  $\mathcal{L}_{RWA}$  и разлагая его по собственным проекторам, для корреляционной функции (4) получаем:

$$\mathcal{K}(\tau) = \sum_{k=0}^8 \left[ C_k^{13} e^{(\lambda_k - i\omega_L)\tau} + C_k^{23} e^{(\lambda_k - i\omega'_L)\tau} \right]. \quad (5)$$

Здесь  $C_k^{l3}$ ,  $l = 1, 2$  — коэффициенты интенсивности, определяемые формулами:

$$C_k^{13} = \langle 0|\hat{\sigma}_{13}^- \cdot |k\rangle\rangle\langle k|\hat{\sigma}_{13}^+, \quad C_k^{23} = \langle 0|\hat{\sigma}_{23}^- \cdot |k\rangle\rangle\langle k|\hat{\sigma}_{23}^+, \quad (6)$$

где символ “ $\cdot$ ” обозначает перемножение операндов по правилам умножения  $3 \times 3$ -матриц, описывающих атомные операторы, и представление результата в виде кет-вектора;  $\lambda_k$ ,  $|k\rangle$  и  $\langle k|$  — собственные значения и собственные векторы матрицы  $\mathcal{L}_{RWA}$ . Спектр мощности записывается в виде:

$$\mathcal{F}(\omega) = 2\Re e \left[ \sum_{k=0}^8 \frac{C_k^{13}}{i(\omega - \omega_L) + \lambda_k} + \frac{C_k^{23}}{i(\omega - \omega'_L) + \lambda_k} \right]. \quad (7)$$

Девять собственных значений определяют предельное число линий в спектре флуоресценции трехуровневого атома, однако, как это следует из (15), в условиях рамановского резонанса для рассматриваемых приближений в спектре в общем случае наблюдается две группы по пять линий, так как отличны от нуля лишь пять коэффициентов  $C_k^{l3}$  для каждого из рассматриваемых переходов  $l = 1, 2$ . При ненулевой рамановской расстройке спектр обогащается, и каждая из групп состоит из семи линий [13].

## 2.2. Динамическая теория флуоресценции для случая мгновенного изменения лиувиллиана

В данной модели предполагается, что атомы подвергаются действию импульса электромагнитного излучения длительностью  $p$ , соответствующего пролету атома через пучок лазерного поля с прямоугольным профилем интенсивности. На переднем фронте импульса за время порядка  $1/\gamma$  происходит переходный процесс, во время которого матрица плотности из первоначального состояния  $\hat{\rho}_0$  переходит в состояние  $\hat{\rho}_{st}$ , определяемое условием  $\langle \hat{\rho}_{st} | \mathcal{L}_{RWA} = 0$ . За время между последовательными попаданиями атома в область лазерного пучка атом претерпевает многочисленные столкновения с другими атомами и стенками кюветы. Это дает основания предположить, что при очередном “влете”

в область лазерного пучка атом находится в состоянии термодинамического равновесия с окружающей средой, и соответствующая матрица плотности описывается ненулевыми матричными элементами  $\rho_{11} = n$ ,  $\rho_{22} = 1 - n$  с  $n = \exp(-\hbar\omega_{12}/k_B T_{\text{eff}})[1 + \exp(-\hbar\omega_{12}/k_B T_{\text{eff}})]^{-1}$ , соответствующим эффективной температуре  $T_{\text{eff}}$ . Во время переходного процесса атом излучает световой импульс, спектр которого и подлежит расчету.

Исходное определение спектра для рассматриваемого случая связано с конечностью времени  $T_p$  формирования излучения и вводится модуляцией излучателя прямоугольным импульсом единичной амплитуды в интервале  $(0, T_p)$ :

$$\mathcal{F}(\omega) = \langle \mathcal{N} \left| \int_0^{T_p} \hat{\sigma}^+(t) e^{i\omega t} dt \right|^2 \rangle, \quad (8)$$

где  $\hat{\sigma}^+(t)$  описывает стохастическую положительно-частотную амплитуду квантового колебания,  $\mathcal{N}$  — нормальное упорядочение,  $\langle \cdot \rangle$  — усреднение по флуктуациям резервуара. Раскрывая упорядоченный квадрат модуля и интегрируя, в наиболее интересном случае  $T_p \gg 1/\gamma$  получаем:

$$\mathcal{F}_{ns}(\omega) = 2\Re e \sum_{k=0}^8 \sum_{\lambda_j \neq 0} \frac{1}{\lambda_j} \left[ \frac{C_{jk}^{13}}{i(\omega - \omega_L) + \lambda_k} + \frac{C_{jk}^{23}}{i(\omega - \omega'_L) + \lambda_k} \right], \quad (9)$$

где коэффициенты  $C_{jk}^{l3}$  выражаются через собственные векторы лиувиллиана по модифицированным формулам (6):  $C_{jk}^{l3} = \langle \hat{\rho}_0 | j \rangle \langle j | \hat{\sigma}_{l3}^- \cdot | k \rangle \langle k | \hat{\sigma}_{l3}^+ \rangle$ ,  $l = 1, 2$ .

При пренебрежении свободным распадом поляризации нижней системы уровней, т. е. при  $\Gamma_{12} = 0$ , в стационарном состоянии атом не излучает, и вся зарегистрированная флуоресценция является некогерентной суперпозицией импульсов излучения от отдельных атомов. Если считать их поступающими в фотоприемник от атома со средней периодичностью  $T$ , то усредненная по времени спектральная интенсивность задается выражением

$$\mathcal{F}_{avr}(\omega) = \Gamma_T \mathcal{F}_{ns}(\omega), \quad (10)$$

где  $\Gamma_T = 1/T$  играет роль нового эффективного релаксационного параметра.



### 3. Расчет спектров поглощения

Плотность вероятности поглощения фотона пробного поля частоты  $\omega$  вблизи резонанса поглощения представляется Фурье-преобразованием антисимметрической части атомной корреляционной функции — средним коммутатором [8, 14]:

$$P(\omega) = g_{pr}^2 \mathcal{A}(\omega), \quad \mathcal{A}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{C}(\tau) e^{i\omega\tau} d\tau. \quad (11)$$

Здесь  $g_{pr}$  — частота Раби, соответствующая пробному полю, а

$$\mathcal{C}(\tau) = \langle [\sigma^+(t), \sigma^-(t + \tau)] \rangle = \langle \sigma^+(t) \sigma^-(t + \tau) \rangle - \langle \sigma^-(t + \tau) \sigma^+(t) \rangle.$$

Для стационарного случая аналогично разделу (2.1) получаем:

$$\mathcal{A}(\omega) = 2g_{pr}^2 \Re e \left[ \sum_{k=0}^8 \frac{D_k^{13}}{i(\omega - \omega_L) + \lambda_k} + \frac{D_k^{23}}{i(\omega - \omega'_L) + \lambda_k} \right], \quad (12)$$

где коэффициенты  $D_k^{l3}$ ,  $l = 1, 2$  задаются формулами:

$$D_k^{l3} = \langle 0 | \hat{\sigma}_{l3}^- \cdot |k\rangle \langle k | \hat{\sigma}_{l3}^+ \rangle - \langle 0 | \hat{\sigma}_{l3}^+ \cdot |k\rangle \langle k | \hat{\sigma}_{l3}^- \rangle. \quad (13)$$

### 4. Результаты аналитических расчетов

Для выполнения аналитических расчетов по приведенным общим соотношениям необходимо определить собственные значения и собственные векторы лиувиллиана (3). В общем случае эта задача слишком сложна, однако она может быть решена в пределе насыщающего поля  $g_\Lambda = \sqrt{g^2 + g'^2} \gg \gamma, \Gamma, \delta$  с применением компьютерных методов аналитических вычислений и теории возмущений. Невозмущенным лиувиллианом считается та часть матрицы  $\mathcal{L}_{\text{RWA}}$ , в которой оставлены лишь асимптотически большие члены  $\sim g, g'$ , соответствующие взаимодействию с лазерным полем; остальная часть полного лиувиллиана  $\mathcal{L}_{\text{RWA}}|_{g=g'=0}$  считается малым возмущением. В [8, 12] рассматривалась лишь старшая асимптотика нулевого порядка. В данной работе рассчитаны также вклады первого порядка по параметру  $(\gamma + \delta)/g_\Lambda$ .

Пренебрегая распадом населенностей нижних уровней:  $\gamma_{12} \rightarrow 0$ ,  $w \rightarrow 0$  и полагая  $\Gamma_{12} \ll \Gamma$ , находим собственные значения лиувиллиана (3):

$$\begin{aligned} \lambda_0 &= 0, & \lambda_1 &= -\frac{\gamma}{2}, & \lambda_2 &= -\Gamma, & \lambda_3 &= ig_\Lambda - \frac{3\gamma}{4} - \frac{\Gamma}{2}, & \lambda_4 &= -ig_\Lambda - \frac{3\gamma}{4} - \frac{\Gamma}{2}, \\ \lambda_5 &= i\frac{g_\Lambda + \delta}{2} - \frac{\Gamma}{2}, & \lambda_6 &= i\frac{g_\Lambda - \delta}{2} - \frac{\Gamma}{2}, & \lambda_7 &= i\frac{-g_\Lambda + \delta}{2} - \frac{\Gamma}{2}, & \lambda_8 &= i\frac{-g_\Lambda - \delta}{2} - \frac{\Gamma}{2}. \end{aligned} \quad (14)$$

#### 4.1. Флуоресценция для стационарного случая

В рассматриваемых приближениях по формулам (6) получаем:

$$\begin{aligned}
 C_0^{13} = C_0^{23} = C_1^{13} = C_1^{23} = 0, \quad C_2^{13} = \frac{\Gamma_{12}}{\gamma} \cos^4 \varphi \sin^2 \varphi, \quad C_2^{23} = \frac{\Gamma_{12}}{\gamma} \cos^2 \varphi \sin^4 \varphi, \\
 C_3^{13} = \frac{\Gamma_{12}}{2\gamma} \cos^4 \varphi \sin^2 \varphi \left( 1 + \frac{i(2\Gamma - 11\gamma)}{64g_\Lambda} \right), \quad C_4^{13} = (C_3^{13})^*, \\
 C_3^{23} = \frac{\Gamma_{12}}{2\gamma} \cos^2 \varphi \sin^4 \varphi \left( 1 + \frac{i(2\Gamma - 11\gamma)}{64g_\Lambda} \right), \quad C_4^{23} = (C_3^{23})^*, \\
 C_5^{13} = C_5^{23} = C_7^{13} = C_7^{23} = 0, \\
 C_6^{13} = \frac{\Gamma_{12}}{\gamma} \cos^4 \varphi \sin^2 \varphi \left( 1 - \frac{i(2\Gamma - \gamma) - \delta}{g_\Lambda} \right), \quad C_6^{23} = \frac{\Gamma_{12}}{\gamma} \cos^2 \varphi \sin^4 \varphi \left( 1 - \frac{i(2\Gamma - \gamma) - \delta}{g_\Lambda} \right), \\
 C_8^{13} = \frac{\Gamma_{12}}{\gamma} \cos^4 \varphi \sin^2 \varphi \left( 1 + \frac{i(2\Gamma - \gamma) - \delta}{g_\Lambda} \right), \quad C_8^{23} = \frac{\Gamma_{12}}{\gamma} \cos^2 \varphi \sin^4 \varphi \left( 1 + \frac{i(2\Gamma - \gamma) - \delta}{g_\Lambda} \right),
 \end{aligned} \tag{15}$$

Здесь  $\cos \varphi = g/g_\Lambda$ ,  $\sin \varphi = g'/g_\Lambda$ . Спектр (7), как и коэффициенты (15), пропорционален скорости дефазировки нижней системы уровней  $\Gamma_{12}$ . Это отражает эффект КПН в рассматриваемых условиях, так как отношение  $\Gamma_{12}/\gamma$  при типичных условиях эксперимента на несколько порядков меньше единицы ( $10^{-2} \div 10^{-5}$ ). Рассмотрим в отдельности каждый из факторов, влияющих на вид спектра.

**Неточность резонанса ( $\delta \neq 0$ ).** Влияние ненулевой однофотонной расстройки заключается, во-первых, в дополнительном сдвиге внутренних — смещенных на  $\pm g_\Lambda/2$  — линий в сторону атомных частот. Во-вторых, нарушается симметричность интенсивностей линий, пропорциональных согласно (7) действительным частям коэффициентов  $C_k$ . Интенсивность линий, смещенных в сторону лазерных частот, растет, и наоборот (см рис. 3). Интересно, что в двухуровневом атоме (ДА) поправки к коэффициентам  $C_k$  и к смещениям  $\Im m \lambda_k$ , связанные с неточностью резонанса имеют лишь второй порядок по  $\delta/g_\Lambda$ . Таким образом,  $\Lambda$ -система оказывается более чувствительной к однофотонной расстройке, чем ДА. Дополнительный сдвиг внутренних линий приводит к их допллеровскому уширению уже в линейном приближении (для остальных линий эти поправки как минимум квадратичны), так что в достаточно сильных полях  $g_\Lambda \gg |\mathbf{k}| \sqrt{k_B T/m}$  только внутренние линии будут претерпевать заметное допллеровское уширение.

**Зависимость от соотношения интенсивностей лазерных полей.** Как видно из формул (15), интенсивности линий зависят лишь от отношения частот Раби, характеризующих интенсивности лазерных полей, что отражает насыщение переходов лазерным полем. Линии со смещениями  $\pm g_\Lambda$  и несмещенная линия, соответствующие отклику ДА под

действием насыщающего лазерного поля, зависят от отношения интенсивностей иначе, чем линии, смещенные на  $\pm g_\Lambda/2$ . В частности, в условиях, когда одна из частот Раби много больше другой (пусть, для определенности,  $g \gg g'$ ), в спектре перехода  $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$  присутствуют лишь три компоненты, соответствующие отклику ДА (см рис. 4). В то же время спектре перехода  $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$  наблюдаются лишь две линии, смещенные на  $\pm g_\Lambda/2$ , т. е. структура Аутлера-Таунса [15]. Таким образом, полный спектр, наблюдаемый, например, в случае равных полей и состоящий из пяти линий, распределяется по частотам перехода. На переходе, где преимущественно сконцентрировано лазерное поле, остаются три линии, соответствующие отклику ДА, а на другом переходе — две линии, смещенные на  $\pm g_\Lambda/2$ .

**Нелоренцевский вклад.** Как видно из формулы (7), полный спектр мощности флуоресценции на каждом из переходов включает помимо лоренцевских линий, интенсивность которых определяется действительными частями коэффициентов  $C_k$ , также и нелоренцевскую часть, величина которой пропорциональна их мнимым частям, а зависимость от частоты подобна зависимости дисперсии. В отличие от лоренцевской части, которая при  $\Re C_k > 0$  везде положительна, этот спектральный вклад не имеет определенного знака, хотя суммарный спектр, конечно, также везде положителен. Из вида коэффициентов (15) следует, что в приближении насыщающего поля нелоренцевская часть является малой поправкой порядка  $\gamma/g_\Lambda$ , однако именно эта поправка определяет характер спада спектральной плотности в крыльях спектра. Хотя нелоренцевский вклад, соответствующий одному коэффициенту, спадает в крыльях как  $1/\Delta\omega$ , учет суммарного вклада от всех коэффициентов приводит к тому, что совокупная нелоренцевская часть спадает так же, как и лоренцевская, т. е.  $\propto 1/\Delta\omega^2$ . Более того, при  $\Gamma = \gamma$ , т. е. в отсутствие упругой дефазировки на дипольных переходах, нелоренцевская и лоренцевская часть в крыльях в порядке  $1/\Delta\omega^2$  полностью компенсируют друга, так что полный спектр спадает гораздо круче:  $\mathcal{F}(\Delta\omega) \propto 1/\Delta\omega^4$ . При этом отношение полного спектра к его лоренцевской части спадает как  $1/\Delta\omega^2$ . С использованием коэффициентов (15), асимптотика спектра для больших  $\Delta\omega$  выглядит следующим образом:

$$\mathcal{F}(\Delta\omega) = \frac{2\Gamma_e\Gamma_{12}\sin^2\varphi\cos^2\varphi}{\gamma}\frac{1}{\Delta\omega^2} + O\left(\frac{1}{\Delta\omega^4}\right) \quad (16)$$

Здесь  $\Gamma_e = \Gamma - \gamma$  — скорость упругой дефазировки дипольных переходов.

Интересно, что для ДА, точные формулы для спектров флуоресценции которых дав-

но известны [14, 16], характер спадания крыльев спектра также определяется нелоренцевской частью [17] и, таким образом, наличием или отсутствием упругой дефазировки. Асимптотический анализ крыльев спектра в этом случае дает зависимость

$$\mathcal{F}(\Delta\omega) = \frac{g^2\Gamma_e}{g^2 + \gamma\Gamma} \frac{1}{\Delta\omega^2} + O\left(\frac{1}{\Delta\omega^4}\right) \quad (17)$$

При этом для ДА упругая дефазировка определяется как разность  $\Gamma_e = \Gamma - \gamma/2$ .

#### 4.2. Флуоресценция для случая скачкообразного изменения лиувиллиана

Воспользовавшись формулами (9), (10), для усредненных коэффициентов интенсивности  $C_k^{i3} = \Gamma_T \sum_{\lambda_j \neq 0} C_{jk}^{i3}/\lambda_j$ , аналогичных по своему смыслу коэффициентам (15), получаем:

$$\begin{aligned} C_0^{13} &= C_0^{23} = C_1^{13} = C_1^{23} = 0, \\ C_2^{13} &= \frac{\Gamma_T}{\gamma} \cos^2 \varphi (n \cos^2 \varphi + (1-n) \sin^2 \varphi), \\ C_2^{23} &= \frac{\Gamma_T}{\gamma} \sin^2 \varphi (n \cos^2 \varphi + (1-n) \sin^2 \varphi), \\ C_3^{13} &= \frac{\Gamma_T}{2\gamma} \cos^2 \varphi (n \cos^2 \varphi + (1-n) \sin^2 \varphi) \left(1 + \frac{i(2\Gamma - 11\gamma)}{64g_\Lambda}\right), & C_4^{13} &= C_3^{13*}, \\ C_3^{23} &= \frac{\Gamma_T}{2\gamma} \sin^2 \varphi (n \cos^2 \varphi + (1-n) \sin^2 \varphi) \left(1 + \frac{i(2\Gamma - 11\gamma)}{64g_\Lambda}\right), & C_4^{23} &= C_3^{23*}, \\ C_5^{13} &= C_5^{23} = C_7^{13} = C_7^{23} = 0, \\ C_6^{13} &= \frac{\Gamma_T}{\gamma} \cos^2 \varphi (n \cos^2 \varphi + (1-n) \sin^2 \varphi) \left(1 - \frac{i(2\Gamma - \gamma) - \delta}{g_\Lambda}\right), \\ C_6^{23} &= \frac{\Gamma_T}{\gamma} \sin^2 \varphi (n \cos^2 \varphi + (1-n) \sin^2 \varphi) \left(1 - \frac{i(2\Gamma - \gamma) - \delta}{g_\Lambda}\right), \\ C_8^{13} &= \frac{\Gamma_T}{\gamma} \cos^2 \varphi (n \cos^2 \varphi + (1-n) \sin^2 \varphi) \left(1 + \frac{i(2\Gamma - \gamma) - \delta}{g_\Lambda}\right), \\ C_8^{23} &= \frac{\Gamma_T}{\gamma} \sin^2 \varphi (n \cos^2 \varphi + (1-n) \sin^2 \varphi) \left(1 + \frac{i(2\Gamma - \gamma) - \delta}{g_\Lambda}\right) \end{aligned} \quad (18)$$

Как видно из формул (15), (18), влияние однофотонной расстройки и нелоренцевской части на вид спектра в динамической теории полностью аналогично их влиянию в стационарной теории. Изменение претерпевает лишь форма зависимости от угла  $\varphi$ , который описывает относительное распределение интенсивности по частотам лазерного поля, так как в формулах появляется дополнительный параметр  $n$ , характеризующий возбуждение нижней системы уровней в состоянии  $\hat{\rho}_0$ .

Для построения правильной феноменологической теории необходимо знать, при каких значениях феноменологически задаваемых параметров релаксации результаты расчетов совпадают с результатами динамической теории. Можно показать, что если вместо

использованного в стационарной теории приближения  $\gamma \rightarrow 0$ ,  $w \rightarrow 0$  задать релаксационные параметры следующим образом:  $\Gamma_{12} \rightarrow \Gamma_T$ ,  $\gamma \rightarrow (1-n)\Gamma_T$ ,  $w \rightarrow n\Gamma_T$ , и затем провести расчеты коэффициентов (6) в рамках стационарной теории, то вместо формул (15) мы придем к формулам, в точности совпадающим с формулами нестационарной теории (18). Таким образом, феноменологическое задание релаксации населенностей нижних уровней позволяет учесть нестационарный отклик рассматриваемой системы в рамках стационарной феноменологической теории.

#### 4.3. Поглощение пробного поля

Воспользовавшись формулами (13) для коэффициентов, определяющих поглощение пробного поля, получаем отличные от нуля коэффициенты:

$$\begin{aligned} D_5^{13} &= \frac{1}{2} \sin^2 \varphi \left( 1 + \frac{i\Gamma + \delta}{g_\Lambda} \right), & D_5^{23} &= \frac{1}{2} \cos^2 \varphi \left( 1 + \frac{i\Gamma + \delta}{g_\Lambda} \right), \\ D_7^{13} &= \frac{1}{2} \sin^2 \varphi \left( 1 - \frac{i\Gamma + \delta}{g_\Lambda} \right), & D_7^{23} &= \frac{1}{2} \cos^2 \varphi \left( 1 - \frac{i\Gamma + \delta}{g_\Lambda} \right). \end{aligned} \quad (19)$$

Как видно из приведенных формул, поглощение света на одном переходе пропорционально отношению интенсивности света на другом к полной интенсивности лазерного поля. Рассматривая, для определенности, переход  $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ , из (13), (19) видим, что для него  $\mathcal{A}^{13} \propto \sin^2 \varphi = g^2/g_\Lambda^2$ , что при  $g = 0$  на первый взгляд может показаться неожиданным. В случае, когда лазерное поле преимущественно сконцентрировано на переходе  $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ , поглощение на этом переходе равно нулю в силу самоиндуцированной прозрачности вещества — одного из проявлений КПН. В рассматриваемом случае вся населенность оказывается сконцентрированной в состоянии  $|1\rangle$ , и переходу  $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$  просто нечем поглощать фотоны пробного поля. В то же время на переходе  $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$  поглощение достигает при резонансе максимального значения.

В условиях неточного резонанса две линии поглощения, смещенные на  $\pm g_\Lambda/2$  относительно частоты лазерного поля, приобретают дополнительный сдвиг  $\delta/2$ . В отличие от спектров флуоресценции, в спектрах поглощения этот сдвиг направлен в сторону от атомных частот. Изменение интенсивности также происходит противоположным образом: уменьшается интенсивность линий, смещенных в сторону лазерных частот и наоборот.

Нелоренцевская часть спектра компенсирует лоренцевскую при малых  $\Delta\omega = \omega - \omega_L$ , сводя полный коэффициент поглощения при  $\Delta\omega = 0$  практически к нулю (см рис. 2b),

что соответствует самоиндуцированной прозрачности. Это должно с необходимостью иметь место при  $\Delta\omega = 0$ , когда пробное поле ничем не отличается от поля накачки и его поглощение при КПН должно быть мало.

## Заключение

Таким образом, учет поправок первого порядка в приближении насыщающего поля позволяет наряду с общим повышением точности ранее известных формул, приводящим к хорошему совпадению с результатами численных расчетов уже при сравнительно небольших частотах Раби  $g_{\Lambda} \sim 5\gamma$ , учесть также более тонкие особенности формирования отклика  $\Lambda$ -систем. В частности, при малых однофотонных расстройках  $\delta$  поправки в спектрах флуоресценции и поглощения  $\Lambda$ -системы линейны по  $\delta$ , в то время как для ДА эти поправки квадратичны. Когда одна из частот Раби много больше другой, флуоресценция на одном переходе имеет вид стандартного для ДА спектрального триплета, а на другом является дополнительной до полного пятикомпонентного спектра  $\Lambda$ -системы. Нелоренцевская часть, несмотря на ее малость в рассматриваемом приближении, определяет характер спадания флуоресценции в крыльях спектра и непротиворечивый вид частотной зависимости коэффициента поглощения в окрестностях лазерных частот. В отсутствие упругой дефазировки “привычный” лоренцевский спад  $\mathcal{F}(\Delta\omega) \propto 1/\Delta\omega^2$  заменяется более крутым  $\mathcal{F}(\Delta\omega) \propto 1/\Delta\omega^4$ , а коэффициент поглощения на частотах лазерной накачки обращается практически в ноль, как и должно быть при КПН.

На основе динамической модели формирования отклика при малой скорости  $\Gamma_{12}$  распада поляризации основного состояния показано, что результаты спектральных расчетов для скачкообразного изменения поля при прямоугольном профиле пучка могут быть сведены к результатам стационарной теории путем введения дополнительных релаксационных параметров, описывающих перераспределение населенности в основном состоянии. Это обосновывает возможность замены динамических моделей их более простыми стационарными феноменологическими аналогами.

Авторы признательны В.Н. Задкову за помощь и ценное обсуждение в ходе подготовки статьи. Данная работа частично поддержана грантом Volkswagen Stiftung No. 1/72944.

## Список литературы

- [1] Б. Д. Агапьев, М. Б. Горный, Б. Г. Матисов, Ю. В. Рождественский, УФН **163**(9), 1 (1993).
- [2] E. Arimondo, *Progress in Optics* (North Holland, Amsterdam, 1996), Vol. 35, p. 257.
- [3] J. H. Xu, Ph. D. thesis, Scuola Normale Superiore, Pisa, Italy (1994).
- [4] S. Brandt, A. Nagel, R. Wynands, D. Meschede, Phys. Rev. A **56**, R1063 (1997).
- [5] O. Schmidt, Ph. D. thesis, Universität Hannover, Hannover, Germany (1995); O. Schmidt, R. Wynands, Z. Hussein, D. Meschede, Phys. Rev. A **53**, R27 (1996).
- [6] H. R. Gray, R. M. Whitley, C. R. Stroud Jr., Opt. Lett. **3**, 218 (1978)
- [7] P. L. Kelley, P. J. Harshman, O. Blum and T. K. Gustafson, J. Opt. Soc. Am. B **11**, 2298(1994)
- [8] A. S. Manka, H. M. Doss, L. M. Narducci, R. Pu, and J. L. Oppo, Phys. Rev. A **43**, 3749 (1991).
- [9] L. Mandel and E. Wolf, *Optical Coherence and Quantum Optics*, Cambridge Univ. Press, 1995.
- [10] Р. Глаубер, в: *Квантовая оптика и квантовая радиофизика*, Изд-во Мир: Москва, 1966.
- [11] Б. А. Гришанин, *Квантовая электродинамика для радиофизиков*, Изд-во Моск. Ун-та: Москва, 1981.
- [12] Б. А. Гришанин, В. Н. Задков, ЖЭТФ, **113**, 144 (1998)
- [13] Y. Stalgies, I. Siemers, B. Appasamy, T. Altevogt and P. E. Toschek, Europhys. Lett., **35**(4), p. 259 (1996)
- [14] B. R. Mollow, Phys. Rev. A **5**, 2217 (1972).
- [15] S. H. Autler and C. H. Towns, Phys. Rev. **100**, 703 (1969)
- [16] B. R. Mollow, Phys. Rev. **188**, 1969 (1969).
- [17] Martin B. Plenio, J. Mod. Opt. **43**, 2171(1996)

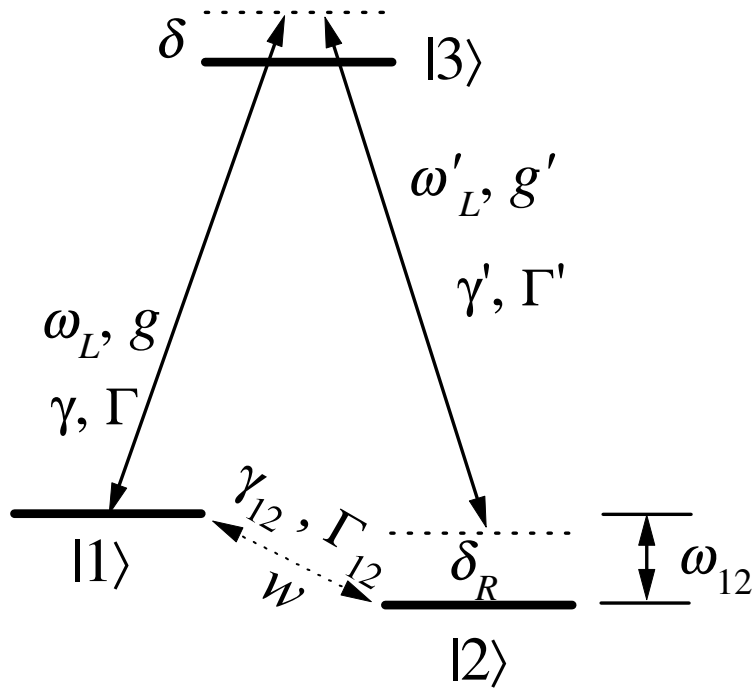


Рис. 1: Конфигурация и параметры  $\Lambda$ -системы, возбуждаемой двумя монохроматическими лазерными полями с частотами  $\omega_L$  и  $\omega'_L$ ;  $\gamma, \gamma', \gamma_{12}$  — скорости релаксации населенности верхних уровней;  $\Gamma_{13}, \Gamma_{23}, \Gamma_{12}$  — скорости дефазировки;  $w$  — скорость некогерентной накачки на уровень 1.

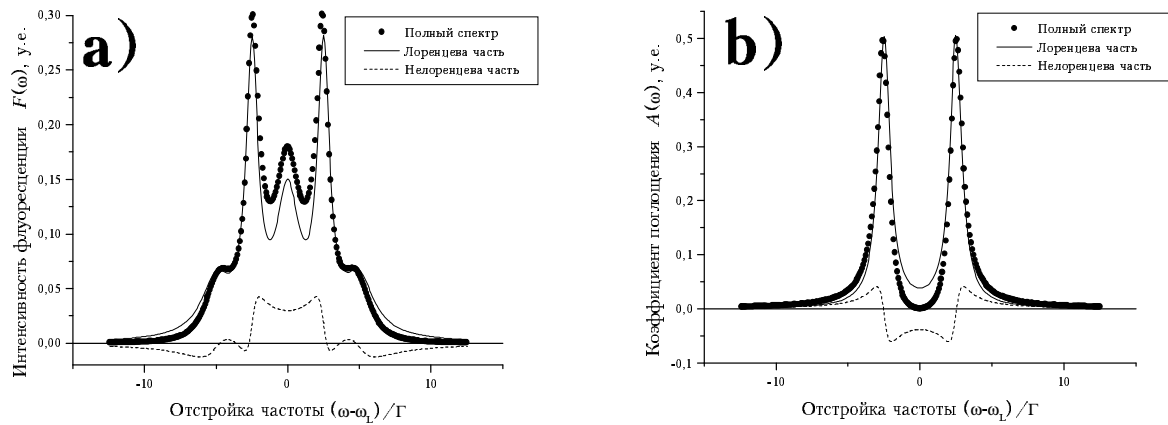


Рис. 2: Спектры а) флуоресценции и б) поглощения с изображенными лоренцевыми и нелоренцевыми частями. Параметры системы:  $g_\Lambda = 5\Gamma$ ,  $\delta = 0$ ,  $\gamma = \Gamma$ ,  $\Gamma_{12} = 0.001\Gamma$ ,  $\varphi = \pi/2$ .



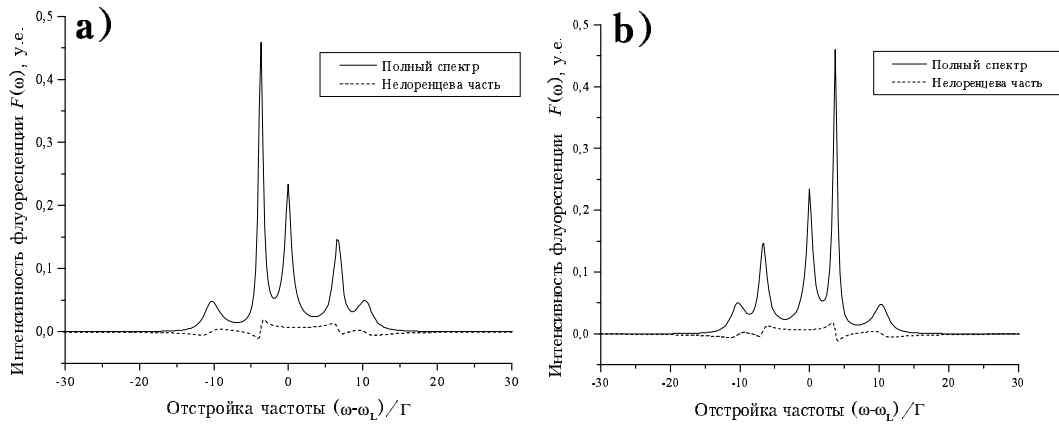


Рис. 3: Спектр флуоресценции на обоих переходах  $\Lambda$ -системы в условиях неточного резонанса. Параметры системы:  $g_\Lambda = 10\Gamma$ ,  $\varphi = \pi/4$ ,  $\gamma = \Gamma$ ,  $\Gamma_{12} = 0.001\Gamma$ ; а)  $\delta = -3\Gamma$ , б)  $\delta = 3\Gamma$ .

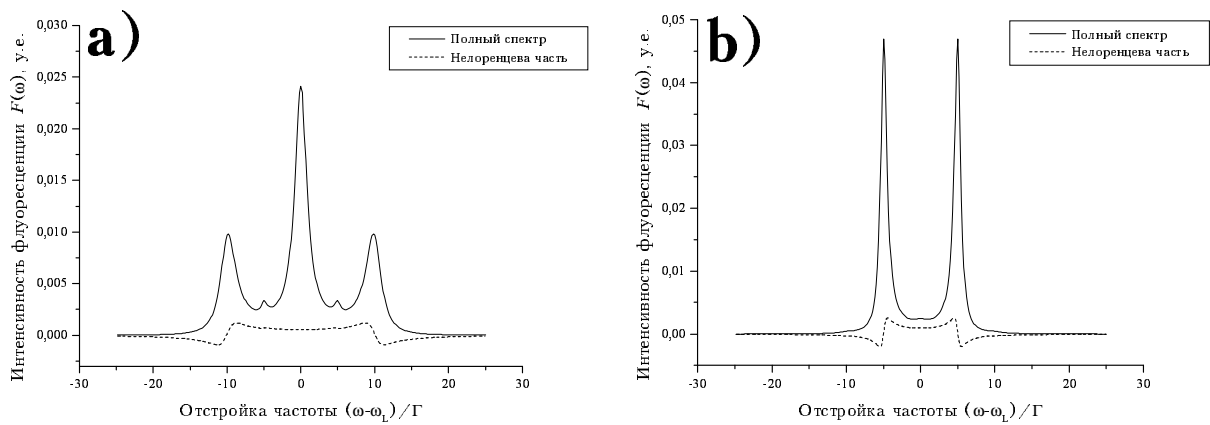


Рис. 4: Спектр флуоресценции  $\Lambda$ -системы на частоте перехода  $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$  для неравных интенсивностей лазерных полей. Параметры системы:  $g_\Lambda = 10\Gamma$ ,  $\delta = 0$ ,  $\gamma = \Gamma$ ,  $\Gamma_{12} = 0.001\Gamma$ ; а)  $\varphi = \pi/20$ , б)  $\varphi = 9\pi/20$ .