ПОЛЯРИЗАЦИОННЫЕ ЭФФЕКТЫ ПРИ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ ИЗЛУЧЕНИЯ С МНОГОУРОВНЕВЫМИ КВАНТОВЫМИ СИСТЕМАМИ

К. А. Насыров, А. М. Шалагин*

Институт автоматики и электрометрии Сибирского отделения Российской академии наук 630090, Новосибирск, Россия

Поступила в редакцию 6 января 1999 г.

Развита теория взаимодействия излучения с многоуровневыми частицами на основе классического описания ориентации углового момента. В качестве примера применения теории рассмотрены задачи о вынужденном комбинационном рассеянии и параметрической генерации при четырехволновом смешении. Показано, что эффективность радиационных процессов существенным образом зависит от поляризации волн накачки и типов оптических переходов (ΔJ) и в значительно меньшей степени от самой величины углового момента J. Объяснены некоторые поляризационные явления, которые наблюдались в экспериментах по четырехволновому смешению.

PACS: 42.25.Ja, 42.50.Hz, 32.80.-t, 33.80.-b

1. ВВЕДЕНИЕ

В последнее время возрос интерес к проблеме взаимодействия излучения с многоуровневыми системами. В частности, здесь может иметься в виду преобразование частоты излучения в резонансных процессах, а также задача о так называемом «безынверсном усилении» в многоуровневых системах. Теоретический анализ таких задач, сам по себе достаточно сложный, еще более усложняется, если при этом интересоваться поляризационными явлениями, сопровождающими данные процессы. Дело в том, что при их рассмотрении уже нельзя ограничиваться рамками модели невырожденных состояний квантовых систем (атомов и молекул) и необходимо рассматривать задачу с учетом вырождения энергетических состояний по ориентации углового момента. Для интенсивных полей такие задачи иногда допускают точное решение при малых значениях углового момента J (J = 0, 1), но при больших значениях J сложность нахождения такого решения неизмеримо возрастает.

К счастью, в пределе $J \gg 1$ можно перейти к классическому описанию ориентации углового момента, которое настолько упрощает рассмотрение этих проблем, что представления модели невырожденных состояний вновь приобретают силу. Более того, в этом приближении известные результаты модели невырожденных состояний после небольшой модификации можно целиком использовать для решения проблем, где важно вырождение атомных или молекулярных состояний. Настоящая работа посвящена

*E-mail: shalagin@iae.nsk.su

©1999

обоснованию данного утверждения и содержит примеры успешного применения предлагаемого метода в конкретных задачах.

Работа построена следующим образом. В разд. 2, в развитие результатов работы [1], описывается способ перехода к классическому описанию ориентации углового момента в кинетических уравнениях для матрицы плотности. Этот переход осуществляется с помощью преобразования типа известного для поступательного движения преобразования Вигнера. В итоге получены уравнения для элементов матрицы плотности, в которых зависимость от магнитных квантовых чисел M преобразуется в зависимость от углов ориентации вращательного момента как от параметра. Другими словами, уравнения становятся точно такими же, как и в модели невырожденных состояний. В следующем порядке приближения по параметру 1/J уравнения приобретают члены, описывающие динамику ориентации углового момента под действием внешнего возмущения.

Далее (разд. 3, 4) предложенный метод используется для анализа поляризационных эффектов в резонансных радиационных процессах.

В разд. 3 рассматривается задача об усилении комбинационной волны в трехуровневой системе. Здесь анализируется зависимость коэффициента усиления комбинационной волны от ее поляризации и поляризации волны накачки, а также от типов атомных или молекулярных переходов, на которых происходит накачка и генерация комбинационной волны.

В разд. 4 рассматривается задача о резонансном четырехволновом параметрическом взаимодействии. Здесь удалось объяснить некоторые экспериментально обнаруженные особенности поведения поляризации параметрически генерируемой волны в зависимости от поляризаций волн накачки. Кроме того, выявлено, что эффективность генерации может сильно зависеть от выбора поляризационных условий. Даны конкретные рекомендации для этого выбора.

2. ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ КВАНТОВОЙ СИСТЕМЫ С ВНЕШНИМ ВОЗМУЩЕНИЕМ ПРИ КЛАССИЧЕСКОМ ОПИСАНИИ ОРИЕНТАЦИИ УГЛОВОГО МОМЕНТА

Для осуществления перехода от квантовомеханического описания ориентации углового момента к классическому мы будем следовать нашим более ранним работам [1–3].

Рассмотрим квантовую систему, подверженную внешнему возмущению \hat{V} . Для описания ее поведения широко используется аппарат матрицы плотности $\hat{\rho}$, позволяющий учитывать разного рода релаксационные процессы (см., например, [4–6]). Предлагаемый нами способ перехода к классическому описанию вращательных состояний может быть реализован только в рамках этого аппарата. Уравнение для матрицы плотности, пригодное для описания широкого круга проблем, в представлении взаимодействия имеет вид

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho} + \widehat{\Gamma}(\hat{\rho}) = \frac{i}{\hbar} \left[\hat{\rho}, \hat{V}\right], \qquad (1)$$

где релаксационные процессы учитываются членом $\widehat{\Gamma}(\hat{\rho})$ (он может иметь довольно сложную структуру, вплоть до интегральных операций), а динамическая часть представлена коммутатором $[\hat{\rho}, \hat{V}]$.

В так называемом JM-представлении матрица плотности $\hat{\rho}$ имеет элементы $\rho(aJM|a'J'M')$. Здесь J — величина углового момента, M — значение его проекции

на ось квантования и *а* — набор остальных квантовых чисел, характеризующих собственное состояние квантовой системы с невозмущенным гамильтонианом.

Ради уменьшения громоздкости формул введем более компактные обозначения:

$$\rho_{nn'}(M|M') = \rho(aJM|a'J'M'), \qquad V_{nn'}(M|M') = V(aJM|a'J'M')$$

включив J в набор квантовых чисел n. В настоящей работе главное внимание мы собираемся уделить динамическим процессам (правая часть уравнения (1)), а в отношении релаксационных процессов примем простейший вариант модели релаксационных констант (см., например, [4, 6]), так что уравнение (1), раскрытое для компонентов матрицы плотности, принимает вид

$$\frac{d}{dt}\rho_{nn'}(M|M') + \Gamma_{nn'}[\rho_{nn'}(M|M') - \rho_{nn'}^{0}(M|M')] = = \frac{i}{\hbar} \sum_{n_{1},M_{1}} [\rho_{nn_{1}}(M|M_{1})V_{n_{1}n'}(M_{1}|M') - V_{nn_{1}}(M|M_{1})\rho_{n_{1}n'}(M_{1}|M')].$$
(2)

Здесь $\rho_{nn'}^0(M|M')$ — значения элементов матрицы плотности в отсутствие возмущения \hat{V} ; константы релаксации $\Gamma_{nn'}$ не зависят от квантовых чисел M, M'.

Очевидно, что в силу эрмитовости $\hat{\rho}$ и \hat{V} справедливы соотношения

 $\rho_{nn'}(M|M') = \rho_{n'n}^*(M'|M), \qquad V_{nn'}(M|M') = V_{n'n}^*(M'|M).$

Предположим теперь в качестве основы для перехода к классическому описанию ориентации углового момента, что входящие в уравнение (2) значения квантовых чисел J велики $(J, J_1, J' \gg 1)$. В классической ситуации угловой момент имеет определенное направление. Другими словами, определенной должна быть его проекция на произвольно выбранное направление. С точки зрения элементов матрицы плотности $\rho_{nn'}(M|M')$, описывающих когерентную связь состояний с проекциями момента M и M', последнее означает, что при произвольном выборе оси квантования значение $\rho_{nn'}(M|M')$ существенно отлично от нуля только при небольших отличиях M и M', во всяком случае при $|M - M'| \ll J$. Точнее говоря, эффективный интервал |M - M'|, характеризующий квантовую неопределенность проекции момента, не должен выходить за пределы, задаваемые характерным угловым масштабом в конкретной задаче. При этом среднее $\overline{M} = (M + M')/2$ естественно трактовать как классическое значение проекции углового момента на выбранную ось квантования.

Когда указанное требование выполнено, удобно перейти к новым переменным:

$$\rho_{nn'}(M,m) = \rho_{nn'}(M|M'), \qquad M = (M+M')/2, \qquad m = M - M',$$

и аналогично для матричного элемента взаимодействия, а также для матричных элементов других операторов. В силу сказанного выше величина $\rho_{nn'}(\bar{M},m)$ в классических условиях должна быть быстро уменьшающейся функцией m: интервал $|m| < m_{ef} \ll J$, где $\rho_{nn'}(\bar{M},m)$ существенно отлична от нуля, как раз является мерой неопределенности величины проекции углового момента в условиях, близких к классическим. Заметим, что в отношении матричного элемента взаимодействия наложенные требования удовлетворяются автоматически. Действительно, при дипольном взаимодействии $V_{nn'}(\bar{M},m)$ отлична от нуля только для $m = 0, \pm 1 \ll J$, при взаимодействии произвольной мультипольности κ имеем $|m| \leq \kappa$, так что для $J \gg \kappa$ величина $V_{nn'}(\bar{M},m)$ является «резкой»

функцией от m, тогда как зависимость от \bar{M} всегда остается плавной на интервале $-J < \bar{M} < J$, согласно явному виду для коэффициентов векторного сложения, через которые выражаются $V_{nn'}(\bar{M}, m)$.

Отмеченные обстоятельства являются подсказкой к тому, что может оказаться удобным и плодотворным введение нового представления для матрицы плотности и для \hat{V} с помощью преобразования

$$\rho_{nn'}(\bar{M},\phi) = \frac{1}{2\pi} \sum_{m} e^{im\phi} \rho_{nn'}(\bar{M},m), \qquad V_{nn'}(\bar{M},\phi) = \sum_{m} e^{im\phi} V_{nn'}(\bar{M},m). \tag{3}$$

Множитель $1/2\pi$ в преобразовании для $\rho_{nn'}$ введен из тех соображений, чтобы выполнялась нормировка

$$\sum_{\bar{M}} \int_{0}^{2\pi} \rho_{nn}(\bar{M},\phi) d\phi = \rho_{nn},\tag{4}$$

где ρ_{nn} — заселенность состояния *n*. Для других операторов переход к новому представлению осуществляется так же, как и для \hat{V} . Обратным преобразованием к (3) (для $\rho_{nn'}$) является

$$\rho_{nn'}(\bar{M},m) = \int_{0}^{2\pi} e^{-im\phi} \rho_{nn'}(\bar{M},\phi) d\phi,$$
(5)

и аналогично для $V_{nn'}$.

Используя (3) и (5), можно установить, что квантовомеханическое среднее некоторой физической величины A вычисляется по правилу

$$\langle A \rangle = \sum_{n,n'} \sum_{M,M'} A_{nn'}(M|M')\rho_{n'n}(M'|M) = \sum_{n,n'} \sum_{\bar{M}} \int A_{nn'}(\bar{M},\phi)\rho_{n'n}(\bar{M},\phi)d\phi.$$
(6)

Заметим, что в части переменных, относящихся к угловому моменту, усреднение в (6) происходит по правилу, характерному для классической функции распределения. Это — вполне ожидаемый результат, поскольку само преобразование (3) имеет прямую аналогию с переходом к известному представлению Вигнера для поступательного движения, а для него имеет место именно такого типа усреднение. С другой стороны, соответствующее правило усреднения свидетельствует о том, что выбранное представление для матрицы плотности является важным этапом на пути к классическому описанию.

Осуществляя преобразование вида (3) над уравнением (2), получим следующее промежуточное уравнение:

$$\begin{pmatrix} \frac{d}{dt} + \Gamma_{nn'} \end{pmatrix} \rho_{nn'}(\bar{M}, \phi) - \Gamma_{nn'}\rho_{nn'}^{0}(\bar{M}, \phi) = \\ = \frac{i}{2\pi\hbar} \sum_{n_{1},m_{1},m_{2}} e^{i(m_{1}+m_{2})\phi} \left[\rho_{nn_{1}} \left(\bar{M} + \frac{m_{2}}{2}, m_{1} \right) V_{n_{1}n'} \left(\bar{M} - \frac{m_{1}}{2}, m_{2} \right) - \\ - V_{nn_{1}} \left(\bar{M} + \frac{m_{2}}{2}, m_{1} \right) \rho_{n_{1}n'}(\bar{M} - \frac{m_{1}}{2}, m_{2}) \right], \\ m_{1} = M - M_{1}, \qquad m_{2} = M_{1} - M'.$$

(7)

Далее будем рассматривать ситуацию, близкую к классической. Это значит, что угловые моменты велики, а проекции их на произвольно выбранное направление обладают малой неопределенностью (в случае уравнения (7) — около значения \overline{M}). Как говорилось выше, при таких условиях $\rho_{nn'}(\overline{M}, m)$ является «резкой» функцией второго аргумента и плавной функцией первого (матричный элемент $V_{nn'}(\overline{M}, m)$ этим свойством обладает автоматически). Эти обстоятельства позволяют нам, во-первых, воспринимать первые аргументы как непрерывные и, во-вторых, воспользоваться разложением по малым поправкам $m_1/2$ и $m_2/2$ в этих аргументах, например,

$$\rho_{nn_{1}}\left(\bar{M} + \frac{m_{2}}{2}, m_{1}\right) = \rho_{nn_{1}}(\bar{M}, m_{1}) + \frac{m_{2}}{2} \frac{\partial}{\partial \bar{M}} \rho_{nn_{1}}(\bar{M}, m_{1}) + \dots,$$

$$V_{n_{1}n'}\left(\bar{M} - \frac{m_{1}}{2}, m_{2}\right) = V_{n_{1}n'}(\bar{M}, m_{2}) - \frac{m_{1}}{2} \frac{\partial}{\partial \bar{M}} V_{n_{1}n'}(\bar{M}, m_{2}) + \dots$$
(8)

Мы ограничиваемся первыми двумя членами разложения, что приводит уравнение (7) к виду

$$\left[\frac{d}{dt} + \Gamma_{nn'}\right] \rho_{nn'}(\bar{M},\phi) - \Gamma_{nn'}\rho_{nn'}^{0}(\bar{M},\phi) =
= \frac{i}{\hbar} \sum_{n_{1}} \left[\rho_{nn_{1}}(\bar{M},\phi) V_{n_{1}n'}(\bar{M},\phi) - V_{nn_{1}}(\bar{M},\phi) \rho_{n_{1}n'}(\bar{M},\phi) \right] +
+ \frac{1}{2} \sum_{n_{1}} \left[\left\{ \rho_{nn_{1}}(\bar{M},\phi), V_{n_{1}n'}(\bar{M},\phi) \right\} - \left\{ V_{nn_{1}}(\bar{M},\phi), \rho_{n_{1}n'}(\bar{M},\phi) \right\} \right].$$
(9)

Здесь {...} — скобки Пуассона, действующие по правилу

$$\{A,B\} = \frac{1}{\hbar} \left[\frac{\partial A}{\partial \bar{M}} \frac{\partial B}{\partial \phi} - \frac{\partial A}{\partial \phi} \frac{\partial B}{\partial \bar{M}} \right].$$

Первый член в правой части уравнения (9) является главным, а второй имеет следующий порядок малости по параметру $1/J \ll 1$, по которому фактически идет разложение (8). Однако главный член может обращаться в нуль, если оператор взаимодействия вызывает переходы только между подуровнями одного энергетического состояния $(V_{nn_1}(\bar{M}, \phi) = \delta_{nn_1}V(\bar{M}, \phi))$, и тогда в правой части (9) останется только второй член, а само уравнение приобретает вид (индекс энергетического состояния не выписываем, а константы релаксации полагаем равными нулю)

$$\frac{d}{dt}\rho = \frac{\partial V}{\partial \phi} \frac{\partial \rho}{\partial \mathcal{M}} - \frac{\partial V}{\partial \mathcal{M}} \frac{\partial \rho}{\partial \phi}, \qquad \mathcal{M} = \hbar \bar{M}.$$

Это уравнение имеет стандартный вид классического уравнения Лиувилля и описывает классическую прецессию углового момента в поле V. Для того чтобы это уравнение имело именно стандартный вид, мы провели коррекцию знака фазы в преобразованиях (3) по сравнению с [1].

Обратим внимание на то, что величина $\hbar M \equiv \mathcal{M}$ есть проекция классического момента количества движения на ось z. Очевидно, что \mathcal{M} и ϕ являются канонически-сопряженными переменными. Тем самым, в частности, подтверждается данная выше интерпретация угла ϕ в формулах (3). Разумеется, и в общем случае, описываемом уравнениями (9), члены, содержащие скобки Пуассона, ответственны за прецессию углового момента, однако она происходит в специфических условиях, когда внешнее возмущение способно вызывать переходы между энергетическими уровнями частицы. Это безусловно накладывает отпечаток на характер такой прецессии.

В настоящей работе мы отвлекаемся от анализа прецессии момента и ограничиваемся только рассмотрением переходов между квантовыми состояниями. При этом в уравнении (9) можно отбросить члены, содержащие классические скобки Пуассона, и мы получаем уравнение

$$\frac{d}{dt} + \Gamma_{nn'} \left[\rho_{nn'}(\bar{M}, \phi) - \Gamma_{nn'} \rho_{nn'}^{0}(\bar{M}, \phi) = \frac{i}{\hbar} \sum_{n_1} \left[\rho_{nn_1}(\bar{M}, \phi) V_{n_1n'}(\bar{M}, \phi) - V_{nn_1}(\bar{M}, \phi) \rho_{n_1n'}(\bar{M}, \phi) \right].$$
(10)

Данное уравнение отличается от уравнения модели, невырожденных состояний только тем, что в нем присутствует зависимость (как от параметра) от \bar{M} и ϕ . В этом проявляется радикальное упрощение проблемы: если известно решение какой-то задачи в модели невырожденных состояний, то учет вырождения из-за вращательного движения сводится всего лишь к замене в известном решении $V_{nn'}$ на $V_{nn'}(\bar{M}, \phi)$ с последующим усреднением искомой характеристики согласно формуле (6).

В классической ситуации наглядной характеристикой служит ориентация в пространстве вектора углового момента. Такой (классический) образ удобен тогда, когда внешним возмущением \hat{V} затрагивается группа энергетических состояний, угловые моменты которых J_n имеют значения вблизи некоторого \bar{J} внутри промежутка $\Delta J \ll \bar{J}$. В заданной системе координат ориентацию углового момента можно характеризовать азимутальным (ϕ) и полярным (θ) углами. Азимутальный угол у нас уже явно фигурирует, а полярный угол связан с проекцией \bar{M} момента на ось квантования и его естественно определить соотношением

$$\cos\theta = \bar{M}/\bar{J}.$$

Нестрогость в определении $\cos \theta$, связанная с разбросом значений J в группе «рабочих» уровней, порождает ошибку в задании направления момента $\sim \Delta J/\bar{J}$, которая в условиях $\bar{J} \gg 1$ может быть существенно меньше квантовой неопределенности направления момента. Последняя в лучшем случае есть $1/\sqrt{J}$.

Таким образом, с учетом сделанных оговорок, в элементах матрицы плотности и внешнего возмущения можно ввести новую переменную вместо \overline{M} :

$$\rho_{nn'}(\theta;\phi) \equiv \bar{J}\rho_{nn'}(\bar{M},\phi), \qquad V_{nn'}(\theta,\phi) \equiv V_{nn'}(\bar{M},\phi)$$
(11)

(мы надеемся, что то, что мы оставили обозначения V и ρ прежними, не вызовет недоразумений). Нормировочный коэффициент \bar{J} выбран так, чтобы в новых переменных среднее от некоторой величины A вычислялось по правилу

$$\langle A \rangle = \sum_{n,n'} \int_{0}^{\pi} \sin\theta d\theta \int_{0}^{2\pi} d\phi A_{nn'}(\theta,\phi) \rho_{n'n}(\theta,\phi).$$
(12)

При этом вместо (4) имеем

$$\int_{0}^{\pi} \sin\theta d\theta \int_{0}^{2\pi} d\phi \rho_{nn}(\theta,\phi) = \rho_{nn}.$$
(13)

Уравнение (10) при замене (11) приводится к виду

$$\begin{bmatrix} \frac{d}{dt} + \Gamma_{nn'} \end{bmatrix} \rho_{nn'}(\theta, \phi) - \Gamma_{nn'}\rho_{nn'}^{0}(\theta, \phi) =$$

= $\frac{i}{\hbar} \sum_{n_1} \left[\rho_{nn_1}(\theta, \phi) V_{n_1n'}(\theta, \phi) - V_{nn_1}(\theta, \phi) \rho_{n_1n'}(\theta, \phi) \right].$ (14)

В этом уравнении в качестве параметра выступают углы ориентации вращательного момента.

Теперь остается вопрос о явном виде матричных элементов взаимодействия $V_{nn'}(\theta, \phi)$. В каждой конкретной ситуации он может быть решен без особых сложностей. Здесь мы рассмотрим случай электрического дипольного взаимодействия, при котором

$$V = -\mu \mathscr{C} = -\sum_{\sigma} (-1)^{\sigma} \mathscr{C}_{\sigma} \mu_{-\sigma},$$

где \mathscr{C}_{σ} и μ_{σ} являются циклическими компонентами векторов электрического поля и дипольного момента. Согласно теореме Вигнера—Эккарта в JM-представлении матричные элементы для циклических компонент вектора дипольного момента имеют вид [7]

$$(\mu_{nn'}(M|M'))_{\sigma} = \exp(i\omega_{nn'}t)(\tilde{\mu}_{nn'}(M|M'))_{\sigma}, \qquad (\tilde{\mu}_{nn'}(M|M'))_{\sigma} = \frac{\mu_{nn'}}{\sqrt{2J+1}}C_{J'M',1\sigma}^{JM}.$$

Здесь $\omega_{nn'}$ — частота перехода между состояниями n и n', $C_{J'M',1\sigma}^{JM}$ — коэффициент векторного сложения, $\mu_{nn'}$ — приведенный матричный элемент дипольного момента, который удовлетворяет свойству [8]

$$\mu_{nn'} = (-1)^{J-J'} \mu_{n'n}^*$$

Используя асимптотику $(J, J' \gg 1)$ коэффициентов векторного сложения [7]

$$C_{J'M',1\sigma}^{JM} = \delta_{M-M',\sigma} D_{\sigma,J-J'}^{1}(0,\theta,0), \qquad \cos\theta = \frac{\bar{M}}{\bar{J}}, \qquad \bar{J} = \frac{J+J'}{2},$$

и применяя преобразование (3) с учетом замены (11), получим

$$(\mu_{nn'}(\theta,\phi))_{\sigma} = \exp(i\omega_{nn'}t)(\tilde{\mu}_{nn'}(\theta,\phi))_{\sigma}, \qquad (\tilde{\mu}_{nn'}(\theta,\phi))_{\sigma} = \frac{\mu_{nn'}}{\sqrt{2\bar{J}}}D^{1*}_{\sigma,J-J'}(\phi,\theta,0).$$
(15)

Здесь *D* — матрица вращения Вигнера:

$$D^{1}_{\sigma,\sigma'}(\phi,\theta,\gamma) = e^{-i\sigma\phi} d^{1}_{\sigma,\sigma'}(\theta) e^{-i\sigma'\gamma}.$$

Явный вид *D*-матрицы и $d^1_{\sigma,\sigma'}$ можно найти в [7].

Предположим теперь, что внешнее поле излучения содержит спектральную компоненту \mathscr{C}_{ω} с частотой ω , близкой к частоте $\omega_{nn'}$ перехода n - n':

$$\mathscr{T}_{\omega}(t) = \mathbf{E}e^{-i\omega t} + \mathbf{E}^* e^{i\omega t}.$$

В этом случае справедливо так называемое резонансное приближение, и для матричного элемента дипольного взаимодействия с данной спектральной компонентой электрического поля получим выражение в $\theta\phi$ -представлении:

$$V_{nn'}(\theta,\phi) = e^{-i\Omega_{nn'}t} V_{nn'}(\theta,\phi), \quad \Omega_{nn'} = \omega - \omega_{nn'}, \quad \omega_{nn'} > 0,$$

$$\tilde{V}_{nn'}(\theta,\phi) = -\sum_{\sigma} (-1)^{\sigma} E_{\sigma}(\tilde{\mu}_{nn'}(\theta,\phi))_{-\sigma} = -\frac{\mu_{nn'}(-1)^{J'-J}}{\sqrt{2\bar{J}}} \sum_{\sigma} E_{\sigma} D^{1}_{\sigma,J'-J}(\phi,\theta,0).$$
(16)

Здесь Е является комплексной амплитудой электрического поля выбранной волны.

При выводе последнего соотношения в (16) мы использовали (15) и свойство *D*-матриц [7]

$$D^{1*}_{-\sigma,-\sigma'}(\phi,\theta,\gamma) = (-1)^{\sigma'-\sigma} D^1_{\sigma,\sigma'}(\phi,\theta,\gamma).$$

Матричные элементы взаимодействия для обратного перехода вычисляются с помощью свойства эрмитовости:

$$V_{n'n}(\theta,\phi) = V_{nn'}^*(\theta,\phi). \tag{17}$$

Если внешнее поле содержит также спектральные компоненты, резонансные другим переходам, с ними следует поступать аналогичным образом.

В заключение этого раздела отметим, что уравнения (9) и (14) являются естественным обобщением уравнений, полученных в работе [1] для модели двухуровневых частиц в поле резонансного излучения. В более ранних работах [9, 10] другим способом (на основе представления когерентных состояний) выведены классические по ориентации углового момента уравнения, которые содержат только диагональные по энергетическим уровням элементы матрицы плотности двухуровневого атома. Этот частный случай отвечает условиям некогерентного возбуждения (широкая линия излучения). При их выполнении из уравнений (14) (и соответствующих уравнений работы [1]) получаются уравнения, в точности совпадающие с уравнениями из [9, 10].

Уравнения (9), (14) очевидным образом обобщаются на случай учета поступательного движения частиц, стандартным путем сюда могут быть введены члены, ответственные за разного рода столкновения.

3. ВЫНУЖДЕННОЕ КОМБИНАЦИОННОЕ РАССЕЯНИЕ

Приведем примеры использования уравнений (14) для описания радиационных процессов в многоуровневых системах. Начнем с того, что рассмотрим процесс вынужденного комбинационного рассеяния излучения в трехуровневой системе. Схема переходов изображена на рис. 1. Сильное поле накачки, резонансное переходу m - n, создает условия для усиления пробной волны p на переходе m-l. Комбинационное рассеяние в простейшем варианте является двухфотонным процессом. Чтобы избавиться

ЖЭТФ, 1999, 116, вып. 2(8)

Рис. 1. Трехуровневая схема для комбинационного рассеяния. Волна накачки резонансна переходу n - m, комбинационная волна генерируется на переходе m - l

от необходимости учитывать и однофотонные процессы, будем полагать, что в отсутствие излучения заселен только уровень *n*. Наша задача состоит в описании формирования поляризации комбинационной волны в зависимости от поляризации волны накачки и типов переходов.

Как известно (см., например, [4]), в рамках модели невырожденных состояний выражение для поляризации среды P^p на частоте комбинационной волны имеет следующую очевидную структуру:

$$P^{p} = -iA\tilde{\mu}_{lm}\tilde{V}^{p}_{ml}|\tilde{V}_{nm}|^{2}\rho^{0}_{nn}.$$
(18)

Здесь A — множитель, который содержит частотные отстройки, релаксационные константы рассматриваемых состояний и может учитывать эффект неоднородного уширения (для дальнейшего точный его вид несуществен, поскольку, как мы уже отмечали, модификации должны подвергаться только матричные элементы, которые в (18) выделены явно), ρ_{nn}^0 — значение заселенности состояния *n* в отсутствие излучения. Разумеется, выражение вида (18) легко получить и непосредственно из уравнения (14).

В соответствии с выведенным в разд. 2 рецептом, обобщение выражения (18) на случай вырождения атомных или молекулярных состояний по ориентации углового момента при $J \gg 1$ состоит в том, что необходимо ввести зависимость от углов θ и ϕ в величинах $\tilde{\mu}$, \tilde{V} , ρ_{nn}^0 и затем провести интегрирование по углам θ и ϕ :

$$\mathbf{P}^{p} = -iA \int \tilde{\boldsymbol{\mu}}_{lm}(\theta,\phi) \tilde{V}^{p}_{ml}(\theta,\phi) |\tilde{V}_{nm}(\theta,\phi)|^{2} \rho^{0}_{nn}(\theta,\phi) \sin\theta d\theta d\phi.$$
(19)

Явный вид функций $\tilde{\mu}_{lm}(\theta, \phi)$ и $\tilde{V}(\theta, \phi)$ дается формулами (15), (16). Полагаем, что в отсутствие волны накачки состояние *n* не обладает анизотропией, т. е. ρ_{nn}^0 не зависит от θ и ϕ . Тогда величину ρ_{nn}^0 можно вынести из-под интеграла по углам, так что с учетом нормировки (13) получим

$$\mathbf{P}^{p} = -i\frac{A}{4\pi}\rho_{nn}^{0}\int \tilde{\boldsymbol{\mu}}_{lm}(\theta,\phi)\tilde{V}_{ml}^{p}(\theta,\phi)|\tilde{V}_{nm}(\theta,\phi)|^{2}\sin\theta d\theta d\phi.$$
(20)

В стационарных условиях изменение амплитуды пробной волны E^{*p*} в процессе распространения описывается уравнением (следствие укороченных уравнений Максвелла):

$$\left(\mathbf{n}\frac{\partial}{\partial\mathbf{r}}\right)\mathbf{E}^{p} = 2\pi i k \mathbf{P}^{p},\tag{21}$$

где **n** — единичный вектор вдоль направления распространения пробной волны. При этом, очевидно, должно соблюдаться условие (условие поперечности электромагнитной волны)

$$\mathbf{n}\mathbf{E}^p = \mathbf{0}.\tag{22}$$

Подставляя (20) в уравнение (21), с учетом формул (15), (16) получим следующие уравнения для круговых компонент вектора электрического поля пробной волны:

$$\left(\mathbf{n}\frac{\partial}{\partial\mathbf{r}}\right)E_{\sigma}^{p} = \frac{1}{2}\sum_{\sigma'}\alpha_{\sigma\sigma'}E_{\sigma'}^{p},\tag{23}$$

где $\alpha_{\sigma\sigma'}$ — некоторая матрица, компоненты которой имеют следующий вид:

$$\alpha_{\sigma\sigma'} = \frac{kA}{4} \frac{|\mu_{ml}|^2}{\hbar} \rho_{nn}^0 \int D_{\sigma\Delta_{lm}}^{1*}(\phi,\theta,0) D_{\sigma'\Delta_{lm}}^1(\phi,\theta,0) |\tilde{V}_{nm}(\theta,\phi)|^2 \sin\theta d\theta d\phi, \qquad (24)$$

$$\Delta_{lm} = J_l - J_m.$$

Реальная часть этой матрицы определяет усиление комбинационной волны, и поэтому мы ее будем называть матрицей коэффициентов усиления комбинационной волны. В общем случае произвольной поляризации волны накачки матрица $\alpha_{\sigma\sigma'}$ не является диагональной. Однако, пользуясь свойствами *D*-матриц, можно из (24) увидеть, что матрица α/A является эрмитовой и, следовательно, сама матрица α есть нормальная матрица, т. е. обладающая свойством $\alpha\alpha^{\dagger} = \alpha^{\dagger}\alpha$. Отсюда следует [11], что должно существовать унитарное преобразование, диагонализующее эту матрицу. Соответственно, должны существовать «нормальные» комбинационные волны, то есть волны с такими поляризациями, которые не меняются в процессе распространения.

Пусть комбинационная волна распространяется в направлении оси z, которую выберем в качестве полярной оси, при этом направление распространения волны накачки может быть произвольным. Тогда, в соответствии с (22), у вектора электрического поля комбинационной волны возможны только две ненулевые круговые компоненты ($\sigma = \pm 1$) и, значит, в качестве матрицы коэффициентов усиления $\alpha_{\sigma\sigma'}$ можно рассматривать матрицу размерности 2 × 2. Решение уравнения (23) будем искать в виде $E^p \propto \exp(\alpha z/2)$. Для собственных значений α_{\pm} матрицы α имеем решения

$$\alpha_{\pm} = \frac{\alpha_{+1+1} + \alpha_{-1-1}}{2} \pm \sqrt{\left(\frac{\alpha_{+1+1} - \alpha_{-1-1}}{2}\right)^2 + \alpha_{+1-1}\alpha_{-1+1}}.$$
 (25)

Крутовые компоненты каждой из двух «нормальных» комбинационных волн $\mathbf{E}^{p\pm}$ связаны между собой соотношениями

$$(\alpha_{+} - \alpha_{+1+1})E_{+1}^{p^{+}} = \alpha_{+1-1}E_{-1}^{p^{+}}, \tag{26}$$

$$(\alpha_{-} - \alpha_{-1-1})E_{-1}^{p-} = \alpha_{-1+1}E_{+1}^{p-}.$$
(27)

Очевидно, в силу сказанного выше относительно свойств матрицы α , поляризации «нормальных» комбинационных волн (\mathbf{E}^{p^+} и \mathbf{E}^{p^-}) должны быть ортогональны друг другу. Эти две «нормальные» волны по мере своего распространения в среде усиливаются в разной степени, если подкоренное выражение в (25) отлично от нуля. Если это так, то одна из «нормальных» волн, а именно \mathbf{E}^{p^+} , оказывается в более предпочтительных условиях, из-за того что для нее коэффициент усиления больше и, следовательно, именно эта волна зарождается самопроизвольно. Если же подкоренное выражение в (25) оказывается равным нулю, а это возможно в том случае, когда одновременно выполняются условия

$$\alpha_{+1+1} = \alpha_{-1-1}, \tag{28}$$

$$\alpha_{+1-1} = 0, \tag{29}$$

то ни одна из поляризаций комбинационной волны не обладает преимуществом в усилении.

Легко найти из (24) и явных выражений для *D*-матриц Вигнера [7], что условие (28) выполняется, когда хотя бы один из рассматриваемых переходов является переходом Q-типа ($\Delta_{nm} = 0$ или $\Delta_{lm} = 0$).

Обсудим подробнее, когда же выполняется условие (29). Для этого, проведя в (24) интегрирование по переменной ϕ и используя свойство [7]

$$d^{j}_{\sigma\sigma'}(\theta) = (-1)^{\sigma'-j} d^{j}_{-\sigma\sigma'}(\pi-\theta),$$

получим для α_{+1-1} следующее выражение:

$$\alpha_{+1-1} = \frac{\pi kA}{4} \frac{|\mu_{lm}|^2 |\mu_{nm}|^2}{\bar{J}\hbar^3} \rho_{nn}^0 E_{+1} E_{-1}^* (-1)^{\Delta_{nl}} \times \int d_{1\Delta_{lm}}^1(\theta) d_{1\Delta_{lm}}^1(\pi - \theta) d_{1\Delta_{nm}}^1(\theta) d_{1\Delta_{nm}}^1(\pi - \theta) \sin \theta d\theta.$$
(30)

Выражение под интегралом в (30) всегда положительно.

Согласно (30), условие (29) справедливо, когда $E_{+1} = 0$ или $E_{-1} = 0$. Таким образом, ни одна из «нормальных» комбинационных волн не будет обладать преимуществом в усилении, если хотя бы один из переходов является переходом Q-типа и одновременно одна из круговых компонент волны накачки в данной системе координат равна нулю. Во всех остальных случаях одна из «нормальных» комбинационных волн будет усиливаться в большей степени.

В дальнейшем мы основное внимание уделим рассмотрению зависимости состояния поляризации «нормальной» комбинационной волны E^{p^+} , имеющей максимальный коэффициент усиления, от поляризации волны накачки и типов переходов.

Прежде всего рассмотрим подробнее случай, когда один из переходов есть переход Q-типа. Тогда выполняется условие (28) и из (25) и (26) можно получить следующее соотношение для круговых компонент вектора \mathbf{E}^{p+} :

$$\frac{A}{|A|}|\alpha_{+1-1}|E_{+1}^{p^+} = \alpha_{+1-1}E_{-1}^{p^+}.$$
(31)

Отсюда следует, что $|E_{+1}^{p+}| = |E_{-1}^{p+}|$ и, значит, поляризация волны E^{p+} должна быть линейной. Выясним ориентацию этой поляризации относительно поляризации волны накачки. Выберем оси координат x и y таким образом, чтобы декартовы компоненты проекции вектора E волны накачки на плоскость, ортогональную z, оказались связанными соотношением

$$E_y = ibE_x, \quad b < 1. \tag{32}$$

Такой выбор осей x и y соответствует тому, что ось x направлена вдоль большой оси эллипса поляризации, образованного проекцией вектора E на плоскость xy. Поскольку циклические и декартовы компоненты произвольного вектора связаны друг с другом соотношениями

$$E_{+1} = -\frac{1}{\sqrt{2}}(E_x + iE_y), \qquad E_{-1} = \frac{1}{\sqrt{2}}(E_x - iE_y),$$

$$E_x = \frac{1}{\sqrt{2}}(E_{-1} - E_{+1}), \qquad E_y = \frac{i}{\sqrt{2}}(E_{+1} + E_{-1}),$$
(33)

для круговых компонент вектора Е имеем

$$E_{+1} = -\frac{1-b}{\sqrt{2}}E_x, \qquad E_{-1} = \frac{1+b}{\sqrt{2}}E_x.$$
(34)

Соответственно, для декартовых компонент вектора E^{p^+} из уравнения (31) следуют соотношения

$$E_x^{p^+} = \frac{1}{\sqrt{2}} E_{-1}^{p^+} \left(1 - \frac{|A|}{A} \frac{\alpha_{+1-1}}{|\alpha_{+1-1}|} \right),$$

$$E_y^{p^+} = \frac{i}{\sqrt{2}} E_{-1}^{p^+} \left(1 + \frac{|A|}{A} \frac{\alpha_{+1-1}}{|\alpha_{+1-1}|} \right).$$

Пользуясь выражением (30) для α_{+1-1} , получим

$$E_x^{p^+} = \frac{1}{\sqrt{2}} E_{-1}^{p^+} [1 + (-1)^{\Delta_{n_i}}], \qquad E_y^{p^+} = \frac{i}{\sqrt{2}} E_{-1}^{p^+} [1 - (-1)^{\Delta_{n_i}}]. \tag{35}$$

Напомним, что здесь мы рассматриваем ситуацию, когда хотя бы один из переходов является переходом Q-типа. При этом, если $\Delta_{nl} = 0$ (оба перехода являются переходами Q-типа), то $E_y^{p^+} = 0$, т.е. максимальный коэффициент усиления имеет комбинационная волна линейной поляризации, и вектор ее поля \mathbf{E}^{p^+} направлен вдоль большой оси эллипса поляризации волны накачки. В случае же $|\Delta_{nl}| = 1$ наоборот, $E_x^{p^+} = 0$ и, значит, вектор \mathbf{E}^{p^+} оказывается ортогонален большой оси эллипса поляризации волны накачки.

Теперь рассмотрим случай, когда $|\Delta_{lm}| = |\Delta_{nm}| = 1$. Соотношение (26), связывающее между собой круговые компоненты комбинационной волны \mathbf{E}^{p^+} , в этом случае приобретает вид

$$\begin{bmatrix} |E_{-1}|^2 - |E_{+1}|^2 + \sqrt{(|E_{-1}|^2 - |E_{+1}|^2)^2 + |\frac{2}{5}E_{+1}E_{-1}^*|^2} \end{bmatrix} E_{+1}^{p^+} = \frac{2}{5}E_{+1}E_{-1}^*E_{-1}^{p^+}, \quad (36)$$

$$\Delta_{lm} = \Delta_{nm} = \pm 1.$$

Для $\Delta_{lm} = -\Delta_{nm} = \pm 1$ в уравнении (36) необходимо провести замену $E_{-1} \leftrightarrow E_{+1}$.

Снова выберем ориентацию осей координат x и y таким образом, чтобы декартовы компоненты вектора E волны накачки оказались бы связанными соотношением (32), а для круговых компонент оставались справедливыми соотношения (34). В этой системе координат из (36) получаем уравнение, связывающее между собой декартовы компоненты вектора E^{p+} :

К. А. Насыров, А. М. Шалагин

$$E_y^{p^+} = ib' E_x^{p^+}, (37)$$

где параметр эллиптичности b' для комбинационной волны выражается через b следующим образом:

$$b' = \frac{10b - 1 + b^2 + \sqrt{1 + 98b^2 + b^4}}{10b + 1 - b^2 + \sqrt{1 + 98b^2 + b^4}}, \quad \text{при} \quad \Delta_{lm} = \Delta_{nm} = \pm 1,$$
(38)

$$b' = \frac{-10b - 1 + b^2 + \sqrt{1 + 98b^2 + b^4}}{-10b + 1 - b^2 + \sqrt{1 + 98b^2 + b^4}}, \quad \text{при} \quad \Delta_{lm} = -\Delta_{nm} = \pm 1.$$
(39)

Итак, мы видим, что для указанных переходов поляризация «нормальной» комбинационной волны с максимальным усилением оказывается эллиптичной, если поляризация волны накачки также имеет эллиптичность.

Рассмотрим предельный случай $b \ll 1$, когда поляризация волны накачки близка к линейной. Из (38) и (39) в этом пределе следует

$$b' = 5b,$$
 при $\Delta_{lm} = \Delta_{nm} = \pm 1,$
 $b' = -5b,$ при $\Delta_{lm} = -\Delta_{nm} = \pm 1.$ (40)

В данных случаях поляризация комбинационной волны оказывается близка к линейной и ориентирована так же, как и поляризация волны накачки, но параметр эллиптичности в 5 раз превышает параметр эллиптичности для волны накачки. Кроме того, из (40) следует, что электрический вектор комбинационной волны в случае $\Delta_{lm} = \Delta_{nm} = \pm 1$ вращается в ту же сторону, что и вектор волны накачки, а для $\Delta_{lm} = -\Delta_{nm} = \pm 1 - в$ противоположную.

В другом предельном случае ($b \rightarrow 1$, т.е. поляризация волны накачки близка к круговой) из (38) и (39) следует

$$b' \rightarrow 1$$
, при $\Delta_{lm} = \Delta_{nm} = \pm 1$,
 $b' \rightarrow -1$, при $\Delta_{lm} = -\Delta_{nm} = \pm 1$.

Это означает, что поляризация «нормальной» комбинационной волны с максимальным усилением также близка к круговой и ее электрический вектор в случае $\Delta_{lm} = \Delta_{nm} = \pm 1$ вращается в ту же сторону, что и вектор волны накачки, а для $\Delta_{lm} = -\Delta_{nm} = \pm 1$ — в противоположную.

В частном случае, когда волна накачки имеет простые поляризации (линейную или круговую), «нормальные» моды комбинационной волны при коллинеарном распространении являются волнами либо с той же, либо с ортогональной поляризацией. В табл. 1 и 2 в зависимости от типов переходов и поляризации волны накачки указана поляризация той «нормальной» моды комбинационной волны, которая имеет большее усиление. Другими словами, данные табл. 1, 2 говорят о том, волна с какой поляризацией возникает самопроизвольно.

Несмотря на то что наши результаты получены при классическом описании ориентации углового момента ($J \gg 1$), они остаются качественно справедливыми и при малых значениях J. Например, известно, что для трехуровневой системы $1s_3 - 2p_7 - 1s_4$ в Ne, которая применялась в [12] для создания рамановского лазера (волна накачки с линейной поляризацией была резонансна переходу $1s_3 - 2p_7$ ($\Delta_{nm} = 1$) и комбинационная волна генерировалась на переходе $2p_7 - 1s_4$ ($\Delta_{lm} = 0$)), коэффициент усиления для

Таблица 1

Поляризация комбинационной волны, имеющей максимальный коэффициент усиления, при линейной поляризации волны накачки (указана сверху)



Таблица 2

Поляризация комбинационной волны, имеющей максимальный коэффициент усиления, при круговой поляризации волны накачки (указана сверху). Обозначение *arb* означает, что поляризация комбинационной волны может быть произвольной





Рис. 2. Некоторые топологии четырехуровневых схем для параметрической генерации при четырехволновом смешении

комбинационной волны с поляризацией, ортогональной по отношению к поляризации волны накачки, был выше, чем для комбинационной волны с той же поляризацией, что у волны накачки. Этот результат находится в согласии с нашим, полученным для указанных типов переходов.

4. ЧЕТЫРЕХВОЛНОВОЕ ПАРАМЕТРИЧЕСКОЕ СМЕШЕНИЕ

Рассмотрим задачу о параметрической генерации волны в результате действия трех волн накачки в четырехуровневой квантовой системе. Возможные топологии четырехуровневой системы, в которых волна генерируется на переходе в основное состояние, представлены на рис. 2. Здесь $\omega_a, \omega_b, \omega_c$ — частоты трех волн накачки и ω_d — частота генерируемой волны.

Наша задача состоит в выяснении зависимости поляризации параметрической волны от поляризаций волн накачки и типов переходов, а также в выявлении поляризационных условий для волн накачки с точки зрения эффективности генерации параметрической волны.

В рамках модели невырожденных состояний для поляризации среды на частоте генерируемой волны ω_d справедливо выражение [13] (приближение слабых интенсивностей волн накачки), которое также легко может быть получено и из уравнения (14):

$$P^{d} = -iA\tilde{\mu}_{14}\tilde{V}^{c}_{43}\tilde{V}^{b}_{32}\tilde{V}^{a}_{21}, \tag{41}$$

где $\tilde{\mu}_{14}$ — матричный элемент дипольного момента на переходе 1-4, V_{nm} — матричный элемент потенциала взаимодействия с волной накачки, резонансной переходу n - m (n, m = 1, 2, 3, 4), A — коэффициент пропорциональности, в котором учтены релаксационные константы, эффекты неоднородного уширения, условия резонанса частот волн накачки с переходами в квантовой системе, а также заселенности состояний. Для обсуждаемого здесь вопроса явный вид коэффициента A не важен.

В соответствии с общим рецептом, сформулированным выше, для обобщения уравнения (41) на случай состояний, вырожденных по ориентации углового момента, необходимо приписать зависимость от углов θ , ϕ в дипольном моменте и матричных элементах потенциала взаимодействия, а затем провести интегрирование по ориентации углового момента:

$$\mathbf{P}^{d} = -iA \int \tilde{\boldsymbol{\mu}}_{14}(\theta,\phi) \tilde{V}_{43}^{c}(\theta,\phi) \tilde{V}_{32}^{b}(\theta,\phi) \tilde{V}_{21}^{a}(\theta,\phi) \sin\theta d\theta d\phi.$$
(42)

Уравнение генерации волны d имеет вид (ср. с (21))

$$\frac{\partial}{\partial z}\mathbf{E}^{d} = 2\pi i k \mathbf{P}^{d}.$$
(43)

Используя выражения (15) и (16), после интегрирования в (42) по углу ϕ получим следующее соотношение для круговых компонент вектора поляризации среды (схема рис. 2*a*, случай ω_{21} , ω_{32} , $\omega_{43} > 0$):

$$P_{\sigma}^{d} = \sum_{\sigma_{1}\sigma_{2}\sigma_{3}} T_{\sigma\sigma_{1}\sigma_{2}\sigma_{3}} E_{\sigma_{1}}^{a} E_{\sigma_{2}}^{b} E_{\sigma_{3}}^{c},$$

$$T_{\sigma\sigma_{1}\sigma_{2}\sigma_{3}} = iA(-1)^{\sigma} \mu_{14}\mu_{43}\mu_{32}\mu_{21}\frac{\pi}{2\bar{J}^{2}}\delta_{\sigma,\sigma_{1}+\sigma_{2}+\sigma_{3}} \times$$

$$\times \int_{0}^{\pi} d_{\sigma,\Delta_{14}}^{1}(\theta)d_{-\sigma_{1},\Delta_{21}}^{1}(\theta)d_{-\sigma_{2},\Delta_{32}}^{1}(\theta)d_{-\sigma_{3},\Delta_{43}}^{1}(\theta)\sin\theta d\theta,$$

$$\Delta_{nm} = J_{n} - J_{m}, \qquad \Delta_{21} + \Delta_{32} + \Delta_{43} + \Delta_{14} = 0.$$
(44)

Для схемы переходов рис. 26 ($\omega_{21} > 0$, $\omega_{32} < 0$, $\omega_{43} > 0$) поляризация среды будет иметь вид

$$P_{\sigma}^{d} = \sum_{\sigma_{1}\sigma_{2}\sigma_{3}} T_{\sigma\sigma_{1}\sigma_{2}\sigma_{3}} E_{\sigma_{1}}^{a} (-1)^{\sigma_{2}} (E_{-\sigma_{2}}^{b})^{*} E_{\sigma_{3}}^{c},$$
(45)

а для схемы рис. 2e ($\omega_{21} > 0$, $\omega_{32} > 0$, $\omega_{43} < 0$) имеем

$$P_{\sigma}^{d} = \sum_{\sigma_{1}\sigma_{2}\sigma_{3}} T_{\sigma\sigma_{1}\sigma_{2}\sigma_{3}} E_{\sigma_{1}}^{a} E_{\sigma_{2}}^{b} (-1)^{\sigma_{3}} (E_{-\sigma_{3}}^{c})^{*}$$

$$\tag{46}$$

с тем же тензором $T_{\sigma\sigma_1\sigma_2\sigma_3}$, что и в (44).

Как видно из (44), тензор $T_{\sigma\sigma_1\sigma_2\sigma_3}$ существенным образом зависит от типов рассматриваемых переходов, и его окончательное вычисление возможно после конкретизации этих типов. Заметим, что этот тензор обладает следующим свойством симметрии:

$$T_{\sigma\sigma_1\sigma_2\sigma_3} = T_{-\sigma-\sigma_1-\sigma_2-\sigma_3}.$$
(47)

и, благодаря присутствию символа Кронекера δ в (44), большая часть его элементов равна нулю. Чтобы полностью установить вид данного тензора, на практике достаточно вычислить только три его элемента T_{111-1} , T_{11-11} и T_{1-111} и с помощью свойства (47) найти оставшиеся три ненулевых элемента.

В случае использования крутовых поляризаций волн накачки вид тензора $T_{\sigma\sigma_1\sigma_2\sigma_3}$ (44) диктует определенные ограничения на индексы циркулярных компонент поляризаций этих волн. В частности, для схемы рис. 2*a* генерация параметрической волны невозможна при одинаковых круговых поляризациях всех волн накачки. Поляризация

4*



Рис. 3. Ориентации векторов электрических полей волн накачки и параметрически генерируемой волны: a — электрический вектор волны c отклонен на угол α в плоскости xy, δ — электрический вектор волны a отклонен на угол α . Угол β характеризует ориентацию вектора электрического поля генерируемой волны

одной из волн накачки должна быть ортогональна поляризациям двух других. В схеме рис. 26 генерация параметрической волны, наоборот, возможна при одинаковых круговых поляризациях всех волн накачки и запрещена, когда круговые поляризации волн накачки, резонансных переходам 1–2 и 3–4, одинаковы, а поляризация волны, резонансной переходу 3–2, ортогональна им.

Далее в качестве примера мы сосредоточимся на рассмотрении частного случая переходов $\Delta_{21} = -1$, $\Delta_{32} = 1$, $\Delta_{43} = 0$, $\Delta_{14} = 0$ и простых поляризаций волн накачки. Пусть все три волны накачки распространяются в одном направлении z и имеют линейную поляризацию, причем у двух из них векторы электрического поля ориентированы вдоль одной оси (x), а электрический вектор третьей волны, например, волны c, повернут по отношению к оси x в плоскости xy на угол α (рис. 3a). Электрическое поле волны cможно представить в виде

$$\mathbf{E}^{c} = \mathbf{n}_{x} E_{x}^{c} + \mathbf{n}_{y} E_{y}^{c}, \qquad E_{x}^{c} = E^{c} \cos \alpha, \qquad E_{y}^{c} = E^{c} \sin \alpha, \tag{48}$$

где \mathbf{n}_x и \mathbf{n}_y — соответствующие орты, а E_x^c, E_y^c — компоненты электрического поля волны c, имеющие одинаковую фазу. Далее мы будем интересоваться состоянием поляризации параметрической волны в зависимости от угла α .

Прежде чем проводить дальнейшие вычисления, обратим внимание на то, что в рамках применимости уравнения (44) имеет место принцип суперпозиции по каждому из полей накачки в отдельности. Это означает, что можно рассматривать вклады в поляризацию среды \mathbf{P}^d , порожденные полями E_x^c и E_y^c , независимо. Обозначим через $\mathbf{P}^{d||}$ поляризацию среды, наведенную компонентой поля E_x^c , и через $\mathbf{P}^{d\perp}$ — наведенную компонентой поля E_y^c .

Поскольку здесь рассматриваются волны накачки линейной поляризации, то удобно проводить вычисления компонентов тензора T в декартовых координатах, исходя из выражения (44) и учитывая связь декартовых и круговых компонент (33). Непосредственные вычисления для указанных условий и $\Delta_{21} = -1$, $\Delta_{32} = 1$, $\Delta_{43} = 0$, $\Delta_{14} = 0$ дают

$$P_x^{d||} = \frac{2}{15} B E_x^c, \qquad P_y^{d||} = 0,$$

$$P_x^{d\perp} = 0, \qquad P_y^{d\perp} = \frac{4}{15} B E_y^c.$$
(49)

Здесь *В* — некоторый множитель, зависящий, в частности, от амплитуд остальных волн накачки.

Из (43) следует $E^d \propto P^d$, поэтому при линейных поляризациях волн накачки генерируемая волна является также линейно поляризованной. Из уравнений (49) легко найти соотношение между углом β ориентации плоскости поляризации волны d и углом α :

$$tg \beta = \frac{P_y^{d\perp}}{P_x^{d\mid\mid}} = 2 \frac{E_y^c}{E_x^c} = 2 tg \alpha.$$
(50)

В частности, при малых углах α плоскость поляризации параметрически генерируемой волны оказывается повернутой на угол в 2 раза больший, чем заданный угол α для волны *c*.

Теперь рассмотрим, что будет происходить, если, в отличие от предыдущего случая, плоскости поляризации волн b и c проходят через ось x, а плоскость поляризации волны a повернута на угол α в плоскости xy (рис. 26), т.е. поле волны a имеет вид

$$\mathbf{E}^a = \mathbf{n}_x E^a_x + \mathbf{n}_y E^a_y, \qquad E^a_x = E^a \cos \alpha, \qquad E^a_y = E^a \sin \alpha.$$

Для указанной выше схемы переходов декартовы компоненты вектора поляризации среды на частоте ω_d таковы:

$$P_x^{d||} = \frac{2}{15} B E_x^a, \qquad P_y^{d||} = 0,$$

$$P_x^{d\perp} = 0, \qquad P_y^{d\perp} = -\frac{1}{15} B E_y^a.$$
(51)

Отсюда легко видеть, что генерируемая волна d имеет линейную поляризацию, отклоненную на угол β относительно оси x в плоскости xy. Этот угол оказывается связанным с углом α соотношением

$$\operatorname{tg}\beta = \frac{P_y^d}{P_x^{d||}} = -\frac{1}{2}\frac{E_y^a}{E_x^a} = -\frac{1}{2}\operatorname{tg}\alpha.$$

Таким образом, плоскость поляризации волны d оказывается отклоненной в противоположную сторону по сравнению с волной a и на меньший угол.

Мы рассмотрели случай линейных поляризаций всех волн накачки. Аналогичный анализ легко провести, если от линейной поляризации волны *с* или *а* перейти к эллиптической. Рассмотрим, к примеру, случай, когда электрическое поле волны *с* имеет вид

$$\mathbf{E}^c = \mathbf{n}_x E_x^c + i \mathbf{n}_y E_y^c.$$

Поляризация такой волны является эллиптической с отношением осей эллипса

$$b^c = \left| \frac{E_y^c}{E_x^c} \right|$$

Обобщение на этот случай результатов (49) вполне очевидно:

$$P_x^{d||} = \frac{2}{15} B E_x^c, \quad P_y^{d\perp} = i \frac{4}{15} B E_y^c.$$



Рис. 4. Сопоставление теоретической кривой и экспериментальных данных по измерению зависимости угла β ориентации вектора электрического поля генерируемой волны от соответствующего угла α для волны с

В свою очередь

$$E_x^d \propto P_x^{d||}, \quad E_y^d \propto P_y^{d\perp}.$$

Отсюда следует, что поле волны d будет связано с полем волны c соотношением

$$\mathbf{E}^d = Q(\mathbf{n}_x E_x^c + 2i\mathbf{n}_y E_y^c),$$

где Q — некоторый множитель пропорциональности. Параметр эллиптичности генерируемой волны есть

$$b^d = \left| \frac{E^d_y}{E^d_x} \right| = 2b^d$$

Таким образом, наличие эллиптичности в поляризации волны накачки с порождает эллиптичность в поляризации у параметрически генерируемой волны, но с большим параметром эллиптичности.

В ситуации, когда поляризации волн b и c линейны и направлены вдоль оси x, а поляризация волны a является эллиптической, действуя совершенно аналогично предыдущему рассмотрению, нетрудно найти, что генерируемая волна будет иметь эллиптическую поляризацию с параметром эллиптичности, связанным с параметром эллиптичности волны a соотношением

$$b^d = \frac{1}{2}b^a$$

Как видим, в этом случае параметр эллиптичности у волны d оказывается меньше, чем у волны a.

Обратим внимание на следующее обстоятельство. Различия в состояниях поляризации генерируемой волны в зависимости от того, поляризация какой волны, c или a, отлична от линейной, целиком обусловлены различием типов переходов ($\Delta_{12} = 1$, $\Delta_{34} = 0$) и не зависят от топологии четырехуровневой схемы.

Рассмотренный частный случай типов переходов в четырехуровневой системе соответствует условиям эксперимента [14], где исследовалась генерация излучения при четырехволновом смешении в парах димеров натрия (Na₂). Расположение уровней и переходов в эксперименте [14] соответствовало двойной Λ -схеме со значениями угловых моментов $J_1 = 49$, $J_2 = 48$, $J_3 = 49$, $J_4 = 49$. Столь высокие значения J_i вполне

отвечают условиям классического описания ориентации углового момента. Основные результаты в [14] получены при совпадающих линейных поляризациях и при однонаправленном распространении всех трех волн накачки. При этом рожденная четвертая водна имела такую же поляризацию. В специальном измерении в [14] осуществлен поворот плоскости поляризации одной из волн накачки (в наших обозначениях она соответствует волне с) на некоторый угол и обнаружено, что плоскость поляризации генерируемого излучения поворачивается в ту же сторону, но на больший угол. Этот эффект остался в [14] необъясненным. Он, однако, находит вполне убедительное объяснение на основе сделанного в настоящей работе описания параметрической генерации при четырехволновом смешении. На рис. 4 приведено количественное сопоставление экспериментальной (из [14]) и теоретической (на основе формулы (50)) зависимостей угла поворота плоскости поляризации генерируемой волны (угол β) от угла α , установленного между плоскостями поляризации волны с и двух других волн накачки. Как видим, согласие вполне удовлетворительное, и оно, в частности, является дополнительным аргументом в пользу того, что в экспериментах [14] осуществлялся именно процесс параметрической генерации при четырехволновом смешении.

Центральной проблемой в задаче о преобразовании частоты излучения на основе резонансных радиационных процессов в газовых средах является проблема эффективности преобразования. Оказывается, что далеко не последнюю роль в данном вопросе играет правильный выбор поляризационных условий. Для разных типов переходов оптимальными являются разные соотношения между поляризациями волн накачки. В этом смысле четырехуровневые схемы можно разделить на три класса. Первый класс — это когда все переходы являются переходами Q-типа (все $\Delta = 0$); второй — когда есть два перехода Q-типа, а оставшиеся — P- и R-типа; и, наконец, третий класс — когда нет ни одного перехода Q-типа (все $|\Delta| = 1$).

Простой анализ на основе выражения (44) показывает, что, если в четырехуровневой схеме имеется хотя бы один переход с $\Delta = 0$ (тогда с необходимостью следует существование, по крайне мере, еще одного перехода с $\Delta = 0$), то выгодным является использование линейных поляризаций всех волн накачки. При этом выигрыш в интенсивности генерируемой волны составляет 9/4 по сравнению со случаем круговых поляризаций и тех же интенсивностей волн накачки. Для первого класса четырехуровневых схем оптимально использование совпадающих линейных поляризаций волн накачки. Генерируемая волна будет иметь ту же поляризацию. Для второго класса четырехуровневых схем оптимальной является ситуация, когда линейные поляризации двух волн накачки, резонансных переходам с одинаковым значением $|\Delta|$, совпадают между собой, а поляризация оставшейся волны накачки ортогональна к ним. В этом случае поляризация генерируемой волны будет совпадать с поляризацией последней волны накачки. Заметим, что в условиях эксперимента [14] выбор совпадающих поляризаций всех волн накачки был не оптимальным. Для оптимизации процесса генерации параметрической волны следует выбрать поляризации волн накачки а и в линейными и совпадающими, а поляризацию волны с — ортогональной. При этом генерируемая волна будет иметь ту же поляризацию, что и волна с, а ее интенсивность, согласно формулам (49), должна быть в 4 раза выше по сравнению со случаем, когда все три волны накачки имеют совпадающие линейные поляризации.

Для третьего класса четырехуровневых схем, наоборот, наиболее выгодным становится использование круговых поляризаций волн накачки. Выигрыш в интенсивности генерируемой волны при этом будет составлять те же 9/4 по сравнению со случаем линейных поляризаций волн накачки. Однако и здесь нужно правильно выбирать соотношение между поляризациями волн. Например, если рассматривать схему рис. 2a, то круговые поляризации двух волн накачки, резонансных переходам с одинаковым значением Δ , должны быть совпадающими, а поляризация оставшейся волны — ортогональной к ним. Генерироваться будет волна с поляризацией, совпадающей с поляризацией первых двух волн.

Сделанные нами выводы по поводу оптимальных поляризационных условий справедливы, строго говоря, лишь в рассмотренном приближении слабой интенсивности волн накачки. В условиях, когда существенны высшие нелинейные эффекты, выводы могут претерпеть изменения, особенно при учете возможных релаксационных процессов в системе магнитных подуровней (столкновения, переориентирующие угловой момент). Эта, более общая, ситуация требует отдельного специального рассмотрения.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе мы хотели привлечь внимание к простоте и продуктивности в решении задач о взаимодействии квантовых объектов с внешним возмущением при классическом описании ориентации углового момента. В частности, в проблеме резонансного взаимодействия излучения с многоуровневыми системами сформулирован рецепт, по которому известные решения многих задач, полученные в модели невырожденных состояний, можно легко обобщить на случай вырождения по ориентации углового момента. Рассмотренные в этой работе конкретные примеры в линейном приближении по интенсивностям (комбинационное рассеяние в трехуровневой системе) или по амплитудам (четырехволновое смешение в четырехуровневой системе) полей накачки, конечно же, могут быть проанализированы и в традиционном квантовомеханическом подходе, однако при этом приходится иметь дело с достаточно сложными формулами, включающими в себя 3J-, 6J-, 9J-символы, и необходимо владение соответствующим математическим аппаратом, позволяющим оперировать с ними (см., например, работу [15], в которой рассматривается задача о четырехволновом взаимодействии с двухуровневой системой в ЈМ-представлении, и [16, 17], где эта же задача исследуется на основе представления неприводимых тензоров). Наш же подход позволяет получить результаты без необходимости владения более сложным математическим аппаратом, поскольку все дело сводится к интегрированию простых выражений, содержащих тригонометрические функции. Более того, при этом подходе трудности возрастут ненамного, если потребуется рассмотрение сильных полей с произвольными (эллиптическими) поляризациями, в то время как на основе обычного квантовомеханического подхода для таких задач можно и не найти аналитического решения.

В данной работе мы показали также, что в задаче о преобразовании частоты излучения для обеспечения максимальной эффективности процесса нужно позаботится о правильном выборе поляризаций волн накачки.

Авторы признательны А. А. Аполонскому за предоставление экспериментальных данных и обсуждение полученных результатов. Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 98-02-17924).

Литература

- 1. К. А. Насыров, А. М. Шалагин, ЖЭТФ 81, 1649 (1981).
- К. А. Насыров, А. М. Шалагин, ЖЭТФ 83, 1685 (1982).
- 3. К. А. Насыров, А. М. Шалагин, Квант. электр. 9, 1997 (1982).
- 4. С. Г. Раутиан, Г. И. Смирнов, А. М. Шалагин, Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул, Наука, Новосибирск (1979); S. G. Rautian and A. M. Shalagin, Kinetic Problems of Nonlinear Spectroscopy, North-Holland, Amsterdam (1991).
- 5. Нелинейная спектроскопия, под ред. Н. Бломбергена, Мир, Москва (1979).
- 6. V. S. Letokhov and V. P. Chebotaev, Nonlinear Laser Spectroscopy, Springer, Berlin (1977).
- 7. Д. А. Варшалович, А. Н. Москалев, В. К. Херсонский, Квантовая теория углового момента, Наука, Ленинград (1975).
- 8. И. И. Собельман, Введение в теорию атомных спектров, Наука, Москва (1977).
- 9. M. Ducloy, J. de Phys. 36, 927 (1975).
- 10. M. Ducloy, J. Phys. B 9, 357 (1976).
- Г. Корн, Т. Корн, Справочник по математике для научных работников и инженеров, Наука, Москва (1984).
- 12. K. Rittner, A. Hope, T. Muller-Wirts, and B. Wellegehausen, IEEE J. Quantum Electr. 28, 342 (1992).
- 13. С. А. Ахманов, Р. В. Хохлов, Проблемы нелинейной оптики, ВИНИТИ, Москва (1964).
- 14. A. Apolonskii, S. Balushev, U. Hinze, E. Tiemann, and B. Wellegehausen, Appl. Phys.B 64, 435 (1997).
- 15. J. F. Lam and R. L. Abrams, Phys. Rev. A 26, 1539 (1982).
- 16. M. A. Yuratich and D. C. Hanna, J. Phys. B: At. Mol. Phys. 9, 729 (1976).
- 17. G. G. Adonts and D. G. Akopyan, J. Phys. B: At. Mol. Phys. 18, 3407 (1985)