

К теории индуцированного диполь-дипольными взаимодействиями безызлучательного переноса возбуждения в резонансном газе двухуровневых атомов

А. А. Бобров, С. А. Саакян, В. А. Саутенков и Б. Б. Зеленер

Объединенный институт высоких температур РАН, Ижорская ул., 13, стр.2, Москва
125412, Россия

E-mail: bobozel@mail.ru

Статья поступила в редакцию 21 ноября 2024 г.

Аннотация. В работе обсуждается теория безызлучательного переноса возбуждения в резонансном газе двухуровневых атомов за счет диполь-дипольных взаимодействий. Рассматривается случай большой плотности среды, при которой можно пренебречь переносом возбуждения за счет движения атомов. В качестве источника возбуждения рассматривается облучение границы полубесконечной среды интенсивным резонансным монохроматическим излучением. Показано, что в стационарном случае неоднородная заселенность возбужденного состояния определяется переносом возбуждения, описываемого в рамках диффузионного приближения. В рассчитанной зависимости коэффициента отражения от интенсивности излучения наблюдается насыщение, что качественно согласуется с экспериментальными результатами.

1. ВВЕДЕНИЕ

Диполь-дипольное взаимодействие между двумя одинаковыми двухуровневыми атомами, один из которых находится в основном состоянии, а другой — в возбужденном, может привести к обмену возбуждением. В результате, с некоторой вероятностью, зависящей от расстояния между атомами, атом в основном состоянии может перейти в возбужденное, а атом в возбужденном состоянии может перейти в основное. В газе таких атомов диполь-дипольное взаимодействие приводит к уширению спектральной линии. Впервые спектральное уширение, вызванное диполь-дипольными взаимодействиями было описано в работе Власова и Фурсова [1]. Диполь-дипольное уширение растет пропорционально плотности газа и при определенной плотности становится доминирующим вкладом в ширину спектральной линии газа.

Кроме вклада в ширину линии, диполь-дипольное взаимодействие приводит к безызлучательному переносу возбуждения в газе, поскольку расстояние между взаимодействующими атомами конечно. А вероятностный процесс передачи возбуждения приводит к диффузионному типу переноса.

В последнее время существенно возрос интерес к исследованиям диполь-дипольного взаимодействия в плотных резонансных средах в связи с возможным использованием этих взаимодействий в области квантовых вычислений и квантового моделирования [2]. В частности, в [3] изучались многочастичные эффекты диполь-дипольных взаимодействий с учетом коллективной диссипации и дальнедействующего взаимодействия. Управление диполь-дипольными взаимодействиями с помощью быстрого изменения плотности газа исследовалось в [2]. В [4] обсуждалось манипулирование дипольным взаимодействием в ограниченных геометриях.

В настоящей работе мы продолжаем наши исследования [5–7] возможности управления диполь-дипольными взаимодействиями с помощью оптического возбуждения среды. Впервые зависимость диполь-дипольного уширения от оптического возбуждения была продемонстрирована в экспериментах по исследова-

нию спектра селективного отражения лазерного излучения от границы диэлектрика и плотных насыщенных паров рубидия [8] в высокотемпературной кювете. В [8] было показано, что диполь-дипольное уширение при облучении резонансной среды интенсивным излучением пропорционально не концентрации атомов, а заселенности основного состояния. При этом, было показано [9], что заселенность возбужденного состояния в плотном газе вблизи границы с диэлектриком сильно неоднородна и определяется именно диффузионным характером переноса возбуждения за счет диполь-дипольных взаимодействий.

В работах [5–7] были проведены исследования спектров селективного отражения от плотных паров рубидия для двух разных условий. В одном случае [6], заселенность основного состояния уменьшалась одним интенсивным пучком, спектр селективного отражения которого и регистрировался. В другом случае [5, 7], оптическое возбуждение создавалось интенсивным пучком накачки и регистрировался спектр отражения слабого зондирующего излучения, направленного в пятно контакта излучения накачки на окне кюветы с рубидием. В обоих случаях было получено, что при увеличении интенсивности излучения, создающего оптическое возбуждение, ширина наблюдаемых спектров вначале уменьшалась. Однако, после достижения определенной интенсивности наблюдался эффект насыщения — при увеличении интенсивности накачки ширина спектра отражения переставала меняться.

Полученные нелинейные экспериментальные эффекты не могут быть описаны существующими теоретическими моделями. Теоретическое описание затруднено из-за отсутствия в системе какого-либо малого параметра, поскольку высокая плотность газа и высокая интенсивность излучения приводят к необходимости учитывать как эффект оптического насыщения, так и эффект ослабления поля одновременно.

Существующие модели спектроскопии селективного отражения были разработаны либо для случая высокой интенсивности лазерного излучения и низкой плотности среды [10, 11], либо для случая высокой плотности и пренебрежимо малого оптического насыщения [9, 12],

при этом диффузия возбуждения была учтена лишь в [9]. В настоящей работе делается первая попытка создания теоретической модели, в которой самосогласованно учитывается возбуждение двухуровневых атомов, обратное влияние наведенного дипольного момента на поле в резонансной среде, а также безызлучательный перенос возбуждения, вызванный диполь-дипольными взаимодействиями.

2. ФИЗИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

В экспериментах [5–7] источником оптического возбуждения являлось интенсивное лазерное излучение, направленное на границу диэлектрика (окна кюветы) и резонансного газа. Для описания экспериментов рассмотрим бесконечное полупространство, заполненное плотным газом одинаковых двухуровневых атомов с концентрацией N . Пусть уровни атомов связаны дипольно-разрешенным переходом с матричным элементом μ . Направим ось x перпендикулярно плоскости границы полупространства с положительным направлением вглубь газа. Начало оси x положим в точке пересечения с плоскостью границы. Пусть полупространство в отрицательном направлении оси x заполнено диэлектриком с показателем преломления n . Будем рассматривать одномерную задачу в области пространства много меньшей, чем поперечный размер лазерного пучка. При этом поперечный размер пучка считается много большим характерной длины поглощения в плотном газе, то есть много большим $\lambda/2\pi$, где λ — длина волны излучения накачки.

Пусть на плоскость $x = 0$ в положительном направлении нормально падает монохроматическое излучение с комплексной амплитудой E_0 . Нашей задачей будет найти спектр селективного отражения в зависимости от интенсивности падающего излучения и вызываемого этим излучением оптического возбуждения среды.

Для описания взаимодействия атомов с полем излучения внутри газа воспользуемся формализмом матрицы плотности [13]. Обозначим основное и возбужденное состояния атома газа как a и b соответственно. Следуя [9], пренебрежем излучательным переносом возбуждения, а перенос возбуждения, вызванный диполь-дипольным взаимодействием рассмотрим в виде диффузионного потока с эффективным коэффициентом диффузии D . Однако, в отличие от [9] взаимодействие поля с атомным переходом рассмотрим в квантовом приближении. Тогда для диагонального элемента матрицы плотности $\rho_{bb}(x)$ можно записать следующее уравнение:

$$\frac{\partial \rho_{bb}}{\partial t} = -\gamma_1 \rho_{bb} + \frac{\partial}{\partial x} \left(D \frac{\partial \rho_{bb}}{\partial x} \right) - \frac{2\mu^2 |E|^2}{\hbar^2} \frac{\gamma_2 (2\rho_{bb} - 1)}{\Delta^2 + \gamma_2^2}, \quad (1)$$

где γ_1 — скорость спонтанного распада возбужденного состояния, $E(x)$ — поле излучения в среде, Δ — отстройка частоты поля от атомного резонанса, γ_2 — диполь-дипольное уширение. В соответствии с [8] диполь-дипольное уширение пропорционально заселенности основного состояния газа $\gamma_2 = KN(1 - \rho_{bb})$, где K — константа, зависящая от матричного момента перехода.

Отметим, что здесь мы, как и в [9], пренебрегли полностью переносом возбуждения за счет движения атомов. Это связано с тем, что мы рассматрива-

ем плотности настолько большие, что характерное время диполь-дипольного взаимодействия $\sim \gamma_2^{-1}$ намного меньше времени пролета атомом среднего межатомного расстояния $N^{-1/3}$ с тепловой скоростью $v = \sqrt{2T/M}$, где T — температура атомов, а M — масса атома. Коэффициент диффузии при этом можно оценить, используя в качестве характерного расстояния переноса среднее расстояние между атомами в основном состоянии, а в качестве характерного времени — время γ_2^{-1} :

$$D = C_1 (N(1 - \rho_{bb}))^{-2/3} \gamma_2 = C_1 K (N(1 - \rho_{bb}))^{1/3}, \quad (2)$$

где C_1 — некоторая постоянная порядка 1.

Аналогично [10, 14] для нахождения поля в среде присоединим к уравнению (1) уравнение Максвелла:

$$E'' + k^2 E = 4\pi k^2 N \mu \rho_{ba}, \quad (3)$$

где $k = 2\pi/\lambda$, а недиагональный элемент ρ_{ba} выражается как:

$$\rho_{ba} = -\frac{i}{\hbar} \frac{\mu E (2\rho_{bb} - 1)}{i\Delta - \gamma_2}, \quad (4)$$

где $\hbar$ — постоянная Планка, i — мнимая единица.

Столкновения возбужденных атомов с поверхностью диэлектрика приводят к переходу атомов в основное состояние. Для учета этого эффекта в работах [10, 14], в которых основным механизмом перемещения возбуждения в среде является движение атомов, в качестве граничного условия для диагонального элемента используют $\rho_{bb}(0) = 0$. Однако, в условиях, когда основным процессом переноса является диффузия возмущения, такое граничное условие некорректно, так как существует ненулевая вероятность передачи возбуждения атому, находящемуся на сколь угодно малом расстоянии от границы. В случае диффузии [9], можно положить, что газокинетический поток возбужденных атомов на границе должен быть одного порядка с диффузионным потоком. Отметим, что атомы границу не пересекают, суммарная плотность атомов в основном и возбужденном состояниях при $x > 0$ всюду равна N . В силу этого в качестве граничного условия для диагонального элемента примем равенство потоков:

$$D \frac{\partial \rho_{bb}}{\partial x} \Big|_0 = C_2 v \rho_{bb} \Big|_0, \quad (5)$$

где C_2 — некоторая константа.

Возбужденные атомы, оказавшиеся далеко от источника возбуждения на границе распадаются спонтанно, поэтому граничное условие для диагонального элемента на бесконечности:

$$\rho_{bb} \Big|_\infty = 0. \quad (6)$$

Для поля выберем обычные граничные условия [10, 14]:

$$E \Big|_0 = E_0, \quad (7)$$

$$E \Big|_\infty = 0. \quad (8)$$

Решая совместно уравнения (1) и (3) с коэффициентом диффузии (2) и граничными условиями

(5)–(8), мы можем получить зависимость заселенности возбужденного состояния от расстояния до границы $\rho_{bb}(x)$. На основе этой зависимости можно рассчитать экспериментальное значение коэффициента селективного отражения:

$$R = \left| \frac{E_r}{E_0} \right|^2, \quad (9)$$

где отраженное поле E_r дается выражением [14]:

$$E_r = \frac{n-1}{n+1} E_0 - \frac{4\pi i k N \mu}{n+1} \int_0^\infty \rho_{ba} e^{ikz} dz. \quad (10)$$

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Для получения спектров селективного отражения система (1), (3) решалась численно для стационарного случая (непрерывного излучения накачки), то есть при условии $\partial \rho_{bb}/\partial t = 0$. Модельные расчеты проводились для значения постоянных $C_1 = C_2 = 1$. Примеры расчетных спектров для разных значений интенсивности накачки, т. е. для разных E_0 , приведены на рисунке 1. Для удобства на графике отображен относительный коэффициент отражения $(R - R_0)/R_0$, где $R_0 = ((n-1)/(n+1))^2$ — коэффициент отражения от границы диэлектрик–вакуум. Отстройка от резонанса приведена в относительном виде — Δ/γ_2 .

На рисунке 1 видно, что при увеличении амплитуды поля накачки ширина спектров, которую можно определить как разность отстроек, соответствующих максимуму и минимуму кривой, уменьшается, вследствие уменьшения диполь-дипольного уширения γ_2 . На рисунке 2 приведена зависимость ширины спектра селективного отражения $\delta\omega$ от интенсивности накачки. Ширина спектра рассчитывалась как разность частот излучения накачки, соответствующих отстройкам, при которых производная коэффициента отражения обращалась в 0. Видно, что эта зависимость выходит на плато при больших значениях интенсивности, что соответствует насыщению перехода. Наблюдаемое насыщение качественно согласуется с экспериментом [6].

Кроме сужения спектральной линии, в расчетах, также как и в эксперименте, наблюдается сдвиг спектра S_L , который можно определить как относительное значение отстройки излучения накачки в месте пересечения графика коэффициента отражения с осью абсцисс. На рисунке 3 отображен сдвиг S_L в зависимости от интенсивности. Наблюдаемый сдвиг спектра обуславливается тем, что при изменении населенности основного состояния меняется значение сдвига Лоренца в среде. Отметим, что сдвиг Лоренца в нашей модели учитывается автоматически, так как к уравнению матрицы плотности присоединяется уравнение Максвелла в среде.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе представлена первая теоретическая модель, позволяющая описать спектральные свойства плотной резонансной среды двухуровневых атомов в условиях сильного оптического насыщения. Рассмотрен случай большой плотности, когда основной вклад в

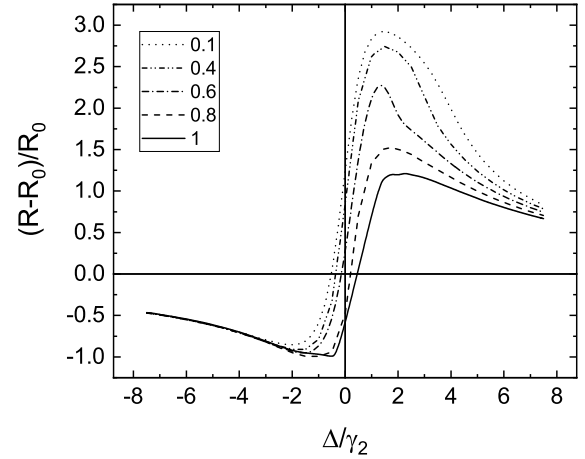


Рисунок 1. Коэффициент селективного отражения для различных значений амплитуды падающего поля E_0 (значения E_0 указаны на рисунке в легенде).

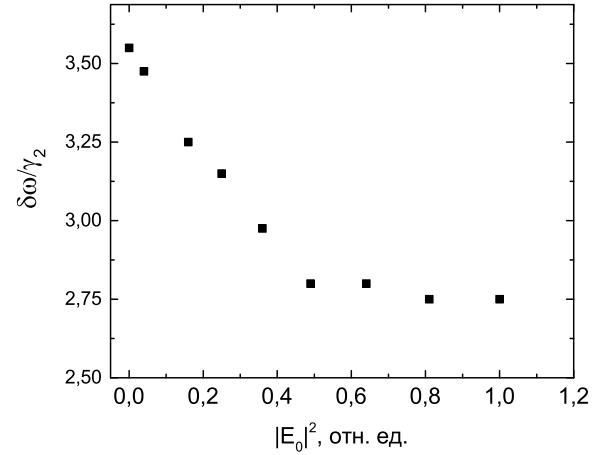


Рисунок 2. Ширина спектра селективного отражения в зависимости от $|E_0|^2$.

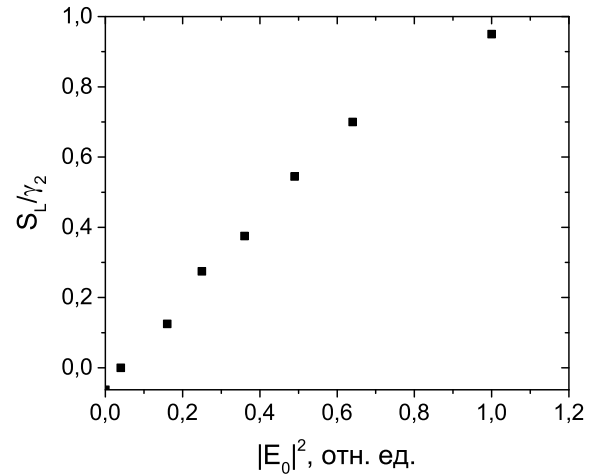


Рисунок 3. Сдвиг спектра селективного отражения в зависимости от $|E_0|^2$.

ширину спектральной линии вносят диполь-дипольные взаимодействия. В модели прямо учтен вызванный диполь-дипольными взаимодействиями перенос возбуждения в среде в диффузионном приближении.

Результаты численного решения уравнений модели качественно согласуются с экспериментальными результатами [6] по исследованию спектров селективного отражения мощного излучения от плотных паров рубидия. Как и в эксперименте, в расчетах наблюдается сужение спектра отражения при увеличении интенсивности излучения. При больших значениях интенсивности, наблюдается эффект насыщения — зависимость ширины спектра от интенсивности выходит на плато. Для количественного сравнения расчетов с экспериментом необходимо дальнейшее развитие многоуровневой модели для учета сверхтонкой структуры D2-линии рубидия.

Также отметим, что в модели использовалось парное приближение для описания диполь-дипольного взаимодействия. Представляется интересным исследовать возможное влияние многочастичных дипольных взаимодействий, которые, по-видимому, должны проявиться при дальнейшем увеличении плотности.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (Государственное задание №075-00269-25-00).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Fursov V S and Vlasov A A 1936 *J. Exp. Theor. Phys.* **6** 750–773
2. Christaller F *et al* 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 173401
3. Lesanovsky I, Olmos B, Guerin W and Kaiser R 2019 *Phys. Rev. A* **100** 021401
4. Alaeian H, Skljarow A, Scheel S, Pfau T and Löw R 2024 *New J. Phys.* **26** 055001
5. Sautenkov V A, Saakyan S A and Zelener B B 2021 *Journal of Russian Laser Research* **42** 405–411
6. Bobrov A A, Saakyan S A, Sautenkov V A and Zelener B B 2021 *JETP Letters* **114** 524–527
7. Sautenkov V, Saakyan S, Bobrov A, Khalutornykh L and Zelener B B 2024 *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **328** 109153
8. Sautenkov V A, Van Kampen H, Eliel E R and Woerdman J P 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3327–3330
9. Van Kampen H, Sautenkov V A, Shalagin A M, Eliel E R and Woerdman J P 1997 *Phys. Rev. A* **56** 3569–3575
10. Vartanyan T A 1985 *Sov. Phys. JETP* **61** 674–677
11. Nienhuis G, Schuller F and Ducloy M 1988 *Physical Review A* **38** 5197–5205
12. Badalyan A, Chaltykian V, Grigoryan G, Papoyan A, Shmavonyan S and Movsessian M 2006 *The European Physical Journal D-Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics* **37** 157–162
13. Stenholm S 2005 *Foundations of laser spectroscopy* (Dover Publications, Inc.)
14. Guo J, Cooper J, Gallagher A and Lewenstein M 1994 *Optics communications* **110** 732–743