ЖЭТФ, 1999, том 115, вып. 6, стр. 1961–1972

ПОЛЕВОЕ РАСЩЕПЛЕНИЕ НЕПОГЛОЩАЮЩЕГО СОСТОЯНИЯ

*Д. А. Шапиро**

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

Поступила в редакцию 14 июля 1998 г.

Исследовано взаимодействие четырехуровневой системы с четырьмя сильными полями, частоты которых образуют цикл. Рассчитаны условия когерентного пленения населенностей, когда формируется непоглощающая суперпозиция состояний. Обнаружено, что в отличие от трехуровневой системы непоглощающее состояние расщепляется, т. е. реализуется при двух значениях расстройки; такое расщепление проявляется в виде узких провалов в частотной зависимости населенности верхнего уровня. Аналогичные провалы найдены в спектре нелинейной восприимчивости, ответственной за эффективность преобразования в процессе резонансного четырехволнового смешения.

1. ВВЕДЕНИЕ

Нелинейная оптика предлагает три основных пути изменения частоты когерентного излучения: вынужденное комбинационное рассеяние, параметрическое смешение и генерацию высших гармоник. Для получения высокоэффективной конверсии излучения в непрерывном режиме любым из этих путей необходимо настроить частоты волн в резонанс с атомными переходами, чтобы увеличить нелинейную восприимчивость. В газе, в спектре которого обычно имеются узкие линии, выигрыш может быть значительным.

Особенно перспективными представляются схемы резонансного четырехволнового смешения с вычитанием частоты, которые в ряде случаев позволяют скомпенсировать доплеровское уширение [1]. Высокая эффективность преобразования частоты света достигнута в импульсных экспериментах на парáх свинца [2]. Квазинепрерывная генерация продемонстрирована на атомных уровнях криптона [3] в ромбической схеме. Непрерывный режим четырехволнового смешения с существенным увеличением частоты в оптическом спектре реализован на димерах натрия в двойной Λ-схеме [4]. Обе схемы смешения приведены на рис. 1. Условия цикла записываются для двойной Λ-схемы и ромбической схемы как

$$\omega_a - \omega_b - \omega_c + \omega_d = 0, \quad \omega_a - \omega_b + \omega_c - \omega_d = 0, \tag{1}$$

где $\omega_a, \omega_b, \omega_c, \omega_d$ — частоты электромагнитных полей, и отличаются друг от друга только последовательностью знаков ($\mp$ или $\pm$) в третьем и четвертом слагаемых. Поэтому их иногда называют разностно-суммарной и суммарно-разностной соответственно. Эффективность преобразования в двойной Λ-схеме оказалась достаточно высокой (25%

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

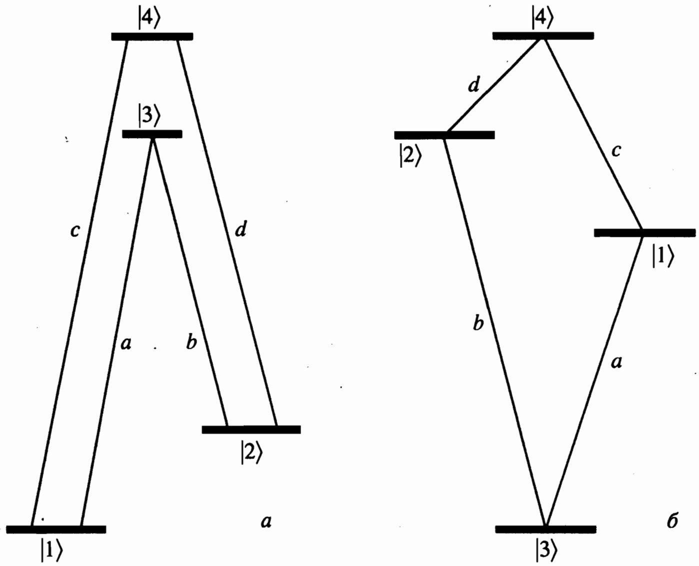

Рис. 1. Двойная Λ- (*а*) и ромбическая (*б*) схемы четырехволнового смешения с вычитанием частоты

по отношению к самой слабой из интенсивностей возбуждающих полей [5]). Однако эффективной конверсии обычно мешает резонансное поглощение света средой.

Чтобы избежать поглощения, предложено использовать эффект электромагнитно-индуцированной прозрачности, возникающей в среде из-за когерентного пленения населенностей [6] (см. также [2, 7, 8]). Явление когерентного пленения населенностей хорошо изучено для трехуровневых систем [9, 10]. Физическая природа эффекта заключается в интерференции квантовых состояний, смешиваемых сильным полем. В трехуровневой Λ-схеме когерентное пленение населенностей проявляется при равных отстройках полей относительно соответствующих переходов в виде отщепленного состояния — линейной комбинации пары нижних состояний, не взаимодействующей с полем. Если зафиксировать отстройку одного из полей, то в интенсивности флуоресценции в зависимости от отстройки второго поля появляется «темный» резонанс — глубокий провал с малой шириной. Обсуждалось также обобщение теории когерентного пленения населенностей на N-уровневые системы (см. [10] и цитированную там литературу). Однако роль когерентного пленения в резонансном четырехволновом смешении оставалась неясной. В работах, посвященных усилению без инверсии в двойной Λ-схеме [11], критерий когерентного пленения населенностей брался из теории трехуровневых систем. С другой стороны, в расчетах полностью резонансного четырехволнового смешения в сильном поле [12] вопрос о критерии когерентного пленения населенностей не рассматривался.

В настоящей работе вычислена нелинейная восприимчивость в простейших схемах четырехволнового смешения с вычитанием частоты. Для этого в разд. 2 на основе уравнений для вектора амплитуд без релаксации приведен простой алгебраический вывод критерия когерентного пленения населенностей в четырехуровневой системе. Обнаружено, что непоглощающее состояние расщепляется, т. е. отщепленное невзаимодействующее с полем состояние наблюдается при двух значениях расстройки. В разд. 3 приведены численные решения уравнения для матрицы плотности в двойной Λ-схеме с учетом релаксации. Показано, что резкий провал в населенности верхнего уровня как функция частоты расщепляется на две компоненты. Рассчитано проявление когерентного пленения населенностей в спектральных контурах нелинейной восприимчивости. В разд. 4 обсуждается вопрос, почему расщепление непоглощающего состояния не наблюдалось ни в измерениях, ни в численных экспериментах по четырехволновому смешению, известных из литературы. Приводятся условия, необходимые для экспериментальной проверки эффекта. В разд. 5 резюмируются результаты работы.

2. УСЛОВИЯ ВОЗНИКНОВЕНИЯ НЕПОГЛОЩАЮЩЕГО СОСТОЯНИЯ

Рассмотрим двойную Λ-схему (рис. 1*a*), резонансно взаимодействующую с четырьмя электромагнитными полями. Обозначим уровни энергии цифрами $j = 1, 2, 3, 4$, а поля — буквами $\nu = a, b, c, d$:

$$\mathbf{E}(t) = \frac{1}{2} \sum_{\nu=a,b,c,d} \mathbf{E}_\nu e^{-i\omega_\nu t} + \text{c.c.}, \tag{2}$$

где $\mathbf{E}_\nu, \omega_\nu$ — амплитуды и частоты полей. Пренебрегая на первом этапе релаксацией, запишем уравнение Шредингера для вектора-столбца амплитуд вероятности $\mathbf{a} = (a_1, a_2, a_3, a_4)^T$ (T означает транспонирование) пребывания системы в состояниях $|j\rangle$ ($j = 1, \ldots, 4$) в представлении взаимодействия:

$$i\dot{\mathbf{a}} = V\mathbf{a}. \tag{3}$$

Матричные элементы взаимодействия отличны от нуля на разрешенных переходах:

$$\begin{aligned} V_{13} &= G_a \exp(-i\Omega_a t), \quad V_{14} = G_b \exp(-i\Omega_b t), \\ V_{23} &= G_c \exp(-i\Omega_c t), \quad V_{24} = G_d \exp(-i\Omega_d t). \end{aligned} \tag{4}$$

Здесь Ω_ν — расстройки полей относительно соответствующих переходов $\omega_{ij} \equiv (E_i - E_j)/\hbar$, $i, j = 1, \ldots, 4$:

$$\Omega_a = \omega_a - \omega_{31}, \quad \Omega_b = \omega_b - \omega_{41}, \quad \Omega_c = \omega_c - \omega_{32}, \quad \Omega_d = \omega_d - \omega_{42}, \tag{5}$$

а $G_\nu = -\mathbf{E}_\nu \mathbf{d}_\nu / 2\hbar$ — частоты Раби, т. е. амплитуды матричных элементов взаимодействия полей $\mathbf{E}_\nu$ с дипольными моментами переходов $\mathbf{d}_\nu$.

Переходя к поиску непоглощающего состояния, преобразуем (3) в систему с постоянными коэффициентами, превратив эрмитову матрицу $V = V^\dagger$ в не зависящую от времени с помощью унитарного преобразования U

$$\tilde{\mathbf{a}} = U\mathbf{a}, \quad \tilde{V} = UVU^\dagger - iUU_t^\dagger. \tag{6}$$

Такое «останавливающее» преобразование можно подобрать, если искать его матрицу в диагональном виде:

$$U = \exp(-iHt), \quad H = \mathrm{diag}(\Delta_1, \Delta_2, \Delta_3, \Delta_4). \tag{7}$$

Для неопределенных коэффициентов Δ_i получается вырожденная система однородных линейных уравнений, разрешимая при условии

$$\Omega_a - \Omega_b - \Omega_c + \Omega_d = 0, \tag{8}$$

которое является следствием цикла (1) по частотам полей. Один из параметров можно задать произвольно, например $\Delta_4 = 0$, а остальные определятся однозначно: $\Delta_1 = \Omega_c$, $\Delta_2 = \Omega_d$, $\Delta_3 = \Omega_c - \Omega_a$. Аналогично унитарным преобразованием

$$U_1 = \exp(-i\Phi), \quad \Phi = \mathrm{diag}(\phi_1, \phi_2, \phi_3, \phi_4)$$

можно превратить частоты Раби G_a, G_b, G_c, G_d в действительные положительные параметры, когда выполнено условие фазового синхронизма $\varphi_a - \varphi_b - \varphi_c + \varphi_d = 0$, где φ_ν — фазы полей. Это условие выполняется, если одно из полей (например, c) генерируется в результате четырехволнового смешения. Если же фазовый синхронизм отсутствует, действительными можно сделать только три амплитуды. Выпишем полученную матрицу $\tilde{V}$. Для краткости ниже будем обозначать частоты Раби их индексами, опуская букву G, т. е. используем замену $G_\nu \to \nu$, $\nu = a, b, c, d$:

$$\tilde{V} = \begin{pmatrix} \Omega_c & 0 & a & c \\ 0 & \Omega_d & b & d \\ a & b & \Omega_c - \Omega_a & 0 \\ c & d & 0 & 0 \end{pmatrix}. \tag{9}$$

В реальной четырехуровневой системе имеется релаксация. Если верхний уровень $|4\rangle$ распадается значительно быстрей состояний $|1\rangle$, $|2\rangle$, $|3\rangle$ ($\Gamma_{1,2,3} \ll \Gamma_4$), то задачу о смешивании этих состояний полем в когерентную суперпозицию можно рассматривать без учета релаксации при $\Gamma_{1,2,3} \ll G_\nu$. В частности, такая суперпозиция долгоживущих состояний при некотором дополнительном ограничении на параметры может отщепляться и не взаимодействовать с полем. Назовем такую суперпозицию отщепленным состоянием.

Ниже выводится критерий возникновения такого отщепленного состояния. Мы стартовали с амплитудных уравнений (3) без релаксации. Если учесть спонтанный распад, то населенность через уровень $|4\rangle$ переносится в отщепленное состояние. Если это отщепленное состояние долгоживущее, то поля перестают поглощаться. Такое непоглощающее состояние четырехуровневой системы проявится как узкий провал в зависимости населенности уровня $|4\rangle$ от частоты. Такой же узкий резонанс появится в частотной зависимости сигнала флуоресценции с уровня $|4\rangle$.

Начнем с более простого и изученного случая трехуровневой Λ-схемы, а потом попробуем обобщить вывод на четырехуровневую. Если $a = b = 0$, то схема рис. 1*а* или 1*б* сводится к трехуровневой $|1\rangle$ — $|4\rangle$ — $|2\rangle$. Чтобы найти условие возникновения отщепленного состояния, надо искать собственный вектор (a_1, a_2, a_4) оператора

$$V_3 = \begin{pmatrix} \Omega_c & 0 & c \\ 0 & \Omega_d & d \\ c & d & 0 \end{pmatrix}, \tag{10}$$

у которого $a_4 = 0, a_1, a_2 \neq 0$. Для ненулевых компонент получается переопределенная система линейных уравнений:

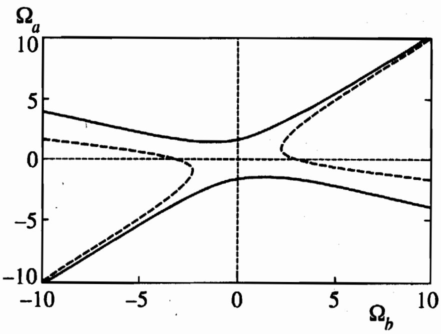

Рис. 2. Критерий когерентного пленения населенностей в плоскости расстроек Ω_b и Ω_a: сплошные кривые соответствуют случаю $bc > ad$ ($a = 1$, $b = 2$, $c = 3$, $d = 4$); штрихами изображена резонансная гипербола в противоположном случае $bc < ad$ (a, b, c те же, $d = 8$)

$$\Omega_c a_1 = \lambda a_1, \quad \Omega_d a_2 = \lambda a_2, \quad c a_1 + d a_2 = 0, \tag{11}$$

где λ — собственное значение. Система (11) имеет решение при условии $\lambda = \Omega_c = \Omega_d$, т. е. только при равных отстройках. Нормированный собственный вектор отщепленного состояния имеет вид

$$|\mathbf{a}_\lambda\rangle = -\frac{d}{\sqrt{c^2+d^2}}\,|1\rangle + \frac{c}{\sqrt{c^2+d^2}}\,|2\rangle\,. \tag{12}$$

Такое состояние известно из теории когерентного пленения населенностей в трехуровневой системе [10].

Перейдем к выводу условий отщепления в четырехуровневой системе с полями $a, b \neq 0$. Имея в виду направление спонтанного распада уровня $|4\rangle$, надо искать отщепленную когерентную суперпозицию состояний $|1\rangle$, $|2\rangle$ и $|3\rangle$. Для этого следует решить задачу на собственные значения

$$\tilde{V}\mathbf{a}_\lambda = \lambda \mathbf{a}_\lambda, \tag{13}$$

причем найти такой собственный вектор $\mathbf{a}_\lambda = (\,a_1,\ a_2,\ a_3,\ 0\,)^T$, у которого обращается в нуль четвертая компонента. Для первых трех ненулевых компонент вектора a_1, a_2, a_3 получается переопределенная система линейных уравнений, условие разрешимости которой сводится к существованию общего корня λ двух уравнений

$$b(ad - bc) + c(\Omega_c - \Omega_a - \lambda)(\Omega_d - \lambda) = 0, \quad bd(\Omega_c - \lambda) + ac(\Omega_d - \lambda) = 0. \tag{14}$$

С учетом (8) получается условие

$$\Omega_a - \Omega_b = \frac{ac+bd}{bd}\left[-\frac{\Omega_b}{2} \pm \sqrt{\frac{\Omega_b^2}{4} + \frac{b}{c}(bc-ad)}\right], \tag{15}$$

связывающее две расстройки и четыре частоты Раби.

Зависимость $\Omega_a(\Omega_b)$ (рис. 2) представляет собой гиперболу с вершиной в начале координат и асимптотами $\Omega_a = \Omega_b$, $\Omega_a = -\Omega_b ac/bd$. Первая асимптота соответствует критерию когерентного пленения населенностей в трехуровневой Λ-схеме, а вторая появляется в четырехуровневой. Если $bc < ad$, то в плоскости $\Omega_a\Omega_b$ появляется вертикальная полоса $\Omega_b^2 \leq 4b(ad-bc)/c$ («запрещенная зона»), внутри которой когерентное пленение населенностей не возникает ни при какой расстройке Ω_a. При точном равенстве $bc = ad$ гипербола вырождается в пару прямых, пересекающихся в начале координат.

Две ветви гиперболы можно интерпретировать как расщепление непоглощающего состояния в четырехуровневой системе на две компоненты. Чтобы выписать соответствующие волновые функции, надо решить спектральную задачу (13). Собственное число находится из (14):

$$\lambda = \frac{ac\Omega_d + bd\Omega_c}{ac + bd},$$

а ненормированный собственный вектор записывается как

$$\mathbf{a}_\lambda = \left(-bd, bc, c\left[-\frac{\Omega_b}{2} \pm \sqrt{\frac{\Omega_b^2}{4} + \frac{b}{c}(bc - ad)}\right], 0\right)^T. \tag{16}$$

В частном случае можно найти также непоглощающее состояние, в котором смешаны не три, а только два состояния, $|1\rangle$ и $|2\rangle$, как в трехуровневой системе. Для реализации такого смешивания должны быть выполнены дополнительные условия, связывающие амплитуды полей и расстройки. Чтобы получить эти условия, ищем собственный вектор матрицы $\tilde{V}$ в подпространстве состояний, ортогональном векторам $|3\rangle$ и $|4\rangle$ ($a_3 = a_4 = 0$). Условие разрешимости сводится к равенству расстроек $\Omega_c = \Omega_d$ (откуда следует также $\Omega_a = \Omega_b$) и уравнению связи для амплитуд

$$\begin{vmatrix} a & b \\ c & d \end{vmatrix} = 0. \tag{17}$$

В данном частном случае гипербола превращается в пару прямых, пересекающихся в начале координат. При этом, как следует из (16), a_3 тоже обращается в нуль. Нормированное отщепленное состояние $\mathbf{a}_\lambda$ получается таким же, как в трехуровневой системе, формула (12).

Мы искали линейное преобразование, оставляющее на месте именно состояние $|4\rangle$, чтобы учесть направление релаксационных процессов. Когерентное пленение населенностей, в котором смешиваются состояния $|1\rangle$, $|2\rangle$, $|3\rangle$, может осуществиться, если релаксационные константы этих уровней $\Gamma_{1,2,3}$ малы по сравнению с Γ_4. Частный случай (17) может быть реализован, если относительно малы константы релаксации уровней $|1\rangle$, $|2\rangle$.

В симметричном случае $a = c$, $b = d$, $\Omega_a = \Omega_c$, $\Omega_b = \Omega_d$ оператор взаимодействия (9) приобретает симметрию относительно перестановки состояний $|3\rangle \leftrightarrow |4\rangle$. Тогда $\mathbf{a}_\lambda = (0, 0, 1, -1)^T$ становится собственным вектором, а разность амплитуд $a_3(t) - a_4(t)$ — интегралом движения. В подпространстве ортогональном вектору $\mathbf{a}_\lambda$ система сводится к трехуровневой. При $a = b, c = d, \Omega_a = \Omega_b, \Omega_c = \Omega_d$ вектор $(1, -1, 0, 0)^T$ становится собственным, а система — инвариантной относительно перестановки состояний $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$. Их асимметричная линейная комбинация (12) является отщепленным состоянием.

Действуя аналогично, для ромбической схемы (рис. 1*б*) получим матрицу взаимодействия, которая отличается от (9) заменой знаков двух расстроек $\Omega_c \longrightarrow -\Omega_c$, $\Omega_d \longrightarrow -\Omega_d$. Пользуясь условием синхронизма, которое отличается от (8) той же заменой знаков

$$\Omega_a - \Omega_b + \Omega_c - \Omega_d = 0, \tag{18}$$

получим для расстроек тот же критерий (15).

3. ТЕМНЫЙ РЕЗОНАНС В НЕЛИНЕЙНОЙ ВОСПРИИМЧИВОСТИ

В данном разделе для учета распада состояний мы воспользуемся квантовым кинетическим уравнением для матрицы плотности в модели релаксационных констант. Таких параметров в открытой четырехуровневой системе четырнадцать: четыре константы релаксации населенностей Γ_j ($j = 1, 2, 3, 4$), четыре константы релаксации поляризаций разрешенных переходов Γ_ν ($\nu = a, b, c, d$), две константы распада когерентности запрещенных переходов $\Gamma_{12} \equiv \Gamma_e, \Gamma_{34} \equiv \Gamma_f$, а также четыре коэффициента Эйнштейна A_ν.

Гамильтониан в динамическом уравнении $\dot{\sigma} = -i[V, \sigma]$ для матрицы плотности σ, как и в предыдущем разделе, можно сделать не зависящим от времени с помощью унитарного преобразования (7)

$$\rho = \exp(iHt)\sigma\exp(-iHt), \quad \tilde{V} = \exp(-iHt)V\exp(iHt) + H$$

и получить матрицу (9).

Включив релаксацию, перепишем кинетическое уравнение как систему

$$\dot{R} = -i\hat{L}R + Q, \tag{19}$$

где Q — столбец скоростей некогерентного возбуждения, $Q_{5j-4} = \Gamma_j N_j$, остальные компоненты Q равны нулю, N_j — стационарные значения населенности уровней, невозмущенных полем, $N_1 + N_2 + N_3 + N_4 = 1$, R — столбец элементов матрицы плотности, упорядоченный по строкам,

$$R = (\rho_{11}, \rho_{12}, \rho_{13}, \rho_{14}, \rho_{21}, \rho_{22}, \rho_{23}, \rho_{24}, \rho_{31}, \rho_{32}, \rho_{33}, \rho_{34}, \rho_{41}, \rho_{42}, \rho_{43}, \rho_{44})^T,$$

а $\hat{L}$, так называемый «супероператор» [13], — матрица 16×16 вида

$$\hat{L} = \begin{pmatrix}
\Gamma_1 & 0 & a & c & 0 & 0 & 0 & 0 & -a & 0 & -A_a & 0 & -c & 0 & 0 & -A_c \\
0 & \hat{\Gamma}_{12} & b & d & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -a & 0 & 0 & 0 & -c & 0 & 0 \\
a & b & \hat{\Gamma}_{13} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -a & 0 & 0 & 0 & -c & 0 \\
c & d & 0 & \hat{\Gamma}_{14} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -a & 0 & 0 & 0 & -c \\
0 & 0 & 0 & 0 & \hat{\Gamma}_{21} & 0 & a & c & -b & 0 & 0 & 0 & -d & 0 & 0 & 0 \\
0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \Gamma_2 & b & d & 0 & -b & -A_b & 0 & 0 & -d & 0 & -A_d \\
0 & 0 & 0 & 0 & a & b & \hat{\Gamma}_{23} & 0 & 0 & 0 & -b & 0 & 0 & 0 & -d & 0 \\
0 & 0 & 0 & 0 & c & d & 0 & \hat{\Gamma}_{24} & 0 & 0 & 0 & -b & 0 & 0 & 0 & -d \\
-a & 0 & 0 & 0 & -b & 0 & 0 & 0 & \hat{\Gamma}_{31} & 0 & a & c & 0 & 0 & 0 & 0 \\
0 & -a & 0 & 0 & 0 & -b & 0 & 0 & 0 & \hat{\Gamma}_{32} & b & d & 0 & 0 & 0 & 0 \\
0 & 0 & -a & 0 & 0 & 0 & -b & 0 & a & b & \Gamma_3 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\
0 & 0 & 0 & -a & 0 & 0 & 0 & -b & c & d & 0 & \hat{\Gamma}_{34} & 0 & 0 & 0 & 0 \\
-c & 0 & 0 & 0 & -d & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \hat{\Gamma}_{41} & 0 & a & c \\
0 & -c & 0 & 0 & 0 & -d & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \hat{\Gamma}_{42} & b & d \\
0 & 0 & -c & 0 & 0 & 0 & -d & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & a & b & \hat{\Gamma}_{43} & 0 \\
0 & 0 & 0 & -c & 0 & 0 & 0 & -d & 0 & 0 & 0 & 0 & c & d & 0 & \Gamma_4
\end{pmatrix}, \tag{20}$$

где

$$\hat{\Gamma}_{12} = i\Gamma_e - (\Omega_d - \Omega_c), \ \hat{\Gamma}_{13} = i\Gamma_a + \Omega_a, \ \hat{\Gamma}_{14} = i\Gamma_c + \Omega_c,$$
$$\hat{\Gamma}_{21} = i\Gamma_e + (\Omega_d - \Omega_c), \ \hat{\Gamma}_{23} = i\Gamma_b + \Omega_b, \ \hat{\Gamma}_{24} = i\Gamma_d + \Omega_d,$$
$$\hat{\Gamma}_{31} = i\Gamma_a - \Omega_a, \ \hat{\Gamma}_{32} = i\Gamma_b - \Omega_b, \ \hat{\Gamma}_{34} = i\Gamma_f + (\Omega_c - \Omega_a),$$
$$\hat{\Gamma}_{41} = i\Gamma_c - \Omega_c, \ \hat{\Gamma}_{42} = i\Gamma_d - \Omega_d, \ \hat{\Gamma}_{43} = i\Gamma_f - (\Omega_c - \Omega_a).$$

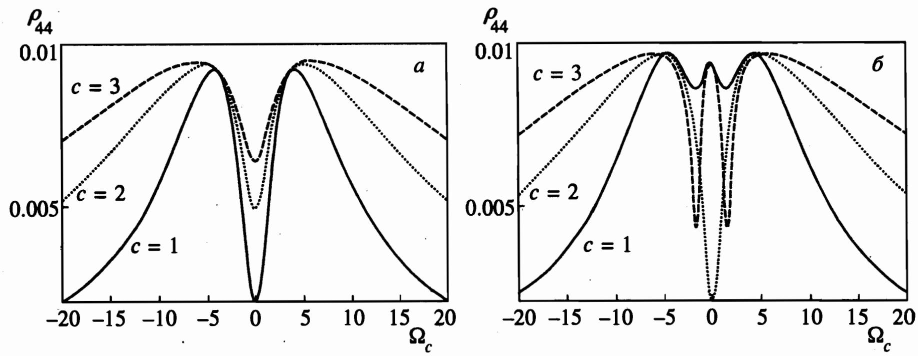

Рис. 3. Зависимости населенности ρ_{44} от расстройки Ω_c при разных значениях c, $b = 0$ (a) и $b = 2$ (*б*), $a = 1$, $d = 4$, $\Gamma_1 = \Gamma_2 = \Gamma_3 = 0.01$, $\Gamma_4 = 1$, недиагональные константы релаксации равны полусуммам соответствующих диагональных: $\Gamma_{ij} = (\Gamma_i + \Gamma_j)/2$, $N_1 = 1$, $N_2 = N_3 = N_4 = 0$, $\Omega_b = \Omega_d = 0$, $\Omega_c = \Omega_a$

Матрица $\hat{L}$ становится симметричной только тогда, когда нет спонтанного распада по разрешенным переходам, $A_\nu = 0$. При отсутствии релаксации, $\Gamma_j = \Gamma_\nu = 0$, $j = 1, \dots, 4$, $\nu = a, b, c, d, e, f$, матрица превращается в бесследовую.

Ниже приведены стационарные решения уравнений (19), полученные путем численного обращения матрицы (20) методом Гаусса. На рис. 3 представлены зависимости населенности уровня $|4\rangle$ от расстройки частоты $\Omega_c = \Omega_a$ при $\Omega_d = \Omega_b = 0$. Чтобы попасть в область параметров когерентного пленения населенностей, константы релаксации уровней $|1\rangle$, $|2\rangle$, $|3\rangle$ выбраны в 100 раз меньше, чем у уровня $|4\rangle$. На рис. 3*а* показан случай $b = 0$, поэтому цикл полей разомкнут и система сводится к трехуровневой. Виден узкий провал вблизи расстройки $\Omega_d = 0$, соответствующий условию когерентного пленения населенностей. С увеличением амплитуды поля c провал становится менее резким, потому что сглаживается насыщением. Рисунок 3*б* соответствует случаю $b \neq 0$, поэтому «темный» резонанс появляется при $c = 2$, когда $bc = ad$. При $bc > ad$ ($c = 3$) провал в населенности верхнего уровня, а значит, и в сигнале флуоресценции расщепляется на две узкие компоненты.

Вычислялась также абсолютная величина нелинейной восприимчивости $\beta \propto |\rho_{14}|$ на частоте ω_c. В простейшей модели, не учитывающей истощение накачки a, b, d, распространение поля c описывается укороченным уравнением Максвелла с поляризацией ρ_{14} в правой части. Поэтому в оптически тонкой среде $c^2 \propto |\rho_{14}|^2 L^2$, где L — длина среды. Зависимость коэффициента конверсии β в произвольных единицах от расстройки изображена на рис. 4*а* при трех значениях амплитуды $c = 1, 2, 3$. Параметры подобраны так, что кривая для $c = 1$ соответствует случаю $bc < ad$ и когерентное пленение населенностей при $\Omega_a = 0$ на ней отсутствует. На кривой для $c = 2$ справедливо равенство (17), поэтому когерентное пленение населенностей появляется в центре линии $\Omega_a = 0$. На кривой для $c = 3$ выполнено обратное неравенство $bc > ad$, поэтому согласно рис. 2 должно быть два резонанса в соответствии с двумя знаками в формуле (15). На рисунке видно, как у резонанса, расщепленного на два широких симметричных «горба», вырастает тоже широкая центральная компонента, в центре которой при увеличении поля c сначала появляется узкий провал. Затем с увеличением поля провал расщепляется на две компоненты. Узкие провалы на кривой для $c = 3$ расположены примерно

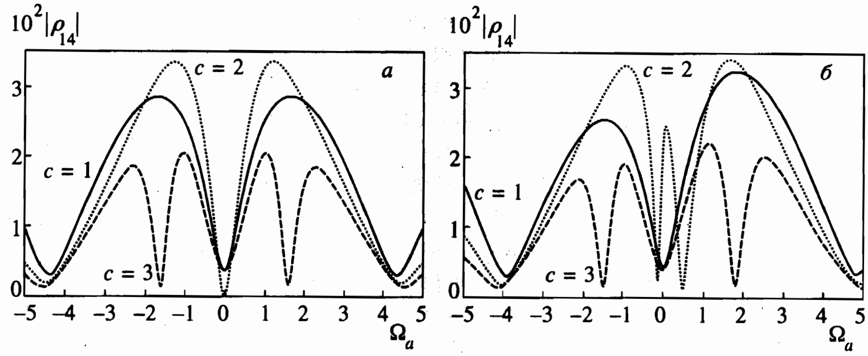

Рис. 4. Зависимости нелинейной восприимчивости (произвольные единицы) от расстройки Ω_a при $\Gamma_1 = \Gamma_2 = \Gamma_3 = 0.01$, $\Gamma_4 = 1$, $\Gamma_{ij} = (\Gamma_i + \Gamma_j)/2$, $A_\nu = 0$; $a = 1$, $b = 2$, $d = 4$, $c = 1, 2, 3$; $\Omega_d = 0$, $\Omega_c = \Omega_a - \Omega_b$; $N_1 = 1$, $N_2 = N_3 = N_4 = 0$, $A_\nu = 0$; $\Omega_b = 0$ (*а*) или $\Omega_b = 0.5$ (*б*)

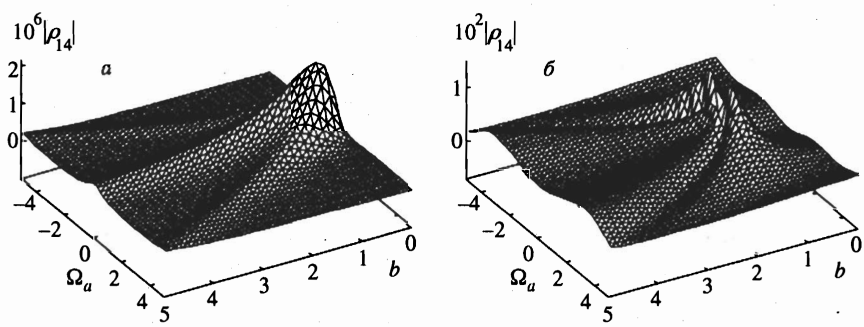

Рис. 5. Зависимости абсолютной величины поляризации $\propto |\rho_{14}|$ от расстройки Ω_a и поля b: *а* — $a = d = 0.001$, $c = 0$, $\Gamma_1 = \Gamma_2 = \Gamma_3 = \Gamma_4 = 0.5$; *б* — $a = 1$, $c = 3$, $d = 4$, $\Gamma_1 = \Gamma_2 = 0.01$, $\Gamma_3 = 0.5$, $\Gamma_4 = 3$. Всюду $A_\nu = 0$, $N_1 = 1$, $N_2 = N_3 = N_4 = 0$

на тех же частотах, где и резкие провалы населенности состояния $|4\rangle$ на рис. 3*б*. При $\Omega_b \neq 0$ «темный» резонанс сдвигается. Пример асимметричной частотной зависимости показан на рис. 4*б*. При $\Omega_b \neq 0$ выражение под знаком квадратного корня в формуле (15) меняет знак при меньшем c. Поэтому на рис. 4*б* расщепление непоглощающего состояния видно уже на кривой для $c = 2$.

4. ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 5 изображена величина $\propto |\rho_{14}|$ как функция расстройки поля a и частоты Раби b, если первоначально был заселен уровень $|1\rangle$. В случае слабых полей a, c, d на рис. 5*а* видно расщепление резонанса на три пика: один несмещенный и две симметричных относительно $\Omega_a = 0$ компоненты дублета Аутлера—Таунса, как и в работе [12]. Сильные поля качественно меняют картину. На рис. 5*б* видно, как при превышении полем критического значения в частотной зависимости появляется «темный» резонанс, который расщепляется на две компоненты. Провалы расталкиваются с увеличением поля b. Расщепленная надвое центральная компонента с ростом b превращается в триплет и квартет. Если учесть не показанные на рисунке боковые компоненты, то всего в спектре нелинейной восприимчивости появляется шесть компонент.

Лин с соавт. [14] исследовали вырожденное четырехволновое смешение излучения титан-сапфирового лазера на D_2 линии ^{85}Rb. Конфигурация уровней соответствовала двухуровневой системе, поэтому в спектре пробного поля наблюдался дублет или триплет. В нашем рассмотрении двухуровневая система отвечает случаю трех слабых (или далеко отстроенных от резонанса) полей, например a, c, d, и одного сильного b (рис. 5*б*). В двухуровневой системе когерентное пленение населенностей не наблюдается, а есть только расщепление резонанса на три компоненты, соответствующие переходам между разными уровнями квазиэнергии.

Харрис с соавт. [2] для преобразования частоты в парах Pb использовали смешение излучения второй и третей гармоник титан-сапфирового лазера $\lambda_b = 406$, $\lambda_d = 283$, $\lambda_a = 293$ в $\lambda_c = 425$ нм. Однако в двойной Λ-схеме в качестве промежуточного состояния $|3\rangle$ (рис. 1*а*) выбирался виртуальный уровень, отстроенный от $|4\rangle$ на 1112 см$^{-1}$. Поэтому система была трехуровневой и расщепления когерентного пленения населенностей не наблюдалось ни в эксперименте, ни в численном моделировании.

В численном расчете Петча с соавт. [7] исследовался процесс смешения в ромбической схеме Kr. Вместо состояния $|2\rangle$ (рис. 1*б*) рассматривался виртуальный уровень, расположенный между $|3\rangle$ и $|4\rangle$, соответствующий двухфотонному переходу $|3\rangle \to |4\rangle$. Соответственно система при этом становится трехуровневой, «супероператор» — матрицей 9×9, а непоглощающее состояние не расщепляется. Частотная зависимость нелинейной восприимчивости, полученная в [7], состоит из двух компонент.

Кочаровская и Мандель [11] при исследовании линейного режима усиления бихроматического поля без инверсии в двойной Λ-схеме для простоты рассматривали специальный симметричный случай. В наших обозначениях это $\Omega_\nu = 0$, $a = b$, $c = d$. Укороченные уравнения Максвелла сохраняют это свойство даже при учете истощения накачки в среде. В этом случае $bd = ac$, т.е. выполнено условие (17) и сохраняется такое же непоглощающее состояние, как в трехуровневой системе (12).

В эксперименте [5] поля d, c, b ($\lambda_d = 488$, $\lambda_c = 599$, $\lambda_b = 655$ нм) подавались во внешнюю ячейку от аргонового и димерного комбинационного лазеров, а также лазера на красителе соответственно. Поле a рождалось в процессе резонансного четырехволнового смешения. Поля a и c получались слабыми, а расстройки Ω_d и Ω_c не могли меняться независимо, так как были жестко связаны условием комбинационной генерации. Поэтому эффект расщепления когерентного пленения населенностей в эксперименте не наблюдался. Расщепление отсутствовало и в теории двойной Λ-схемы с двумя сильными полями на противоположных переходах [15], а появление двух новых пиков в спектре нелинейной восприимчивости в дополнение к четырем обычным было следствием усреднения по скоростям.

Чтобы наблюдать эффекты когерентного пленения населенностей в четырехволновом смешении, необходимо, чтобы все четыре поля были достаточно сильными, $|G_\nu| \gg \gg |\Gamma_\nu - i\Omega_\nu|$, а три нижних уровня достаточно узкими по сравнению с верхним. Наиболее заметным эффект должен быть при $ad = bc$ в точном резонансе $\Omega_a = \Omega_b = \Omega_c = = \Omega_d = 0$. В этом случае согласно условию (17) расщепления нет, поэтому провал в зависимости нелинейной восприимчивости от амплитуды волны c остается резким даже при сравнительно большой константе релаксации уровня $|3\rangle$ (рис. 6).

Экспериментально наибольшая интенсивность поля, генерируемого в процессе не-

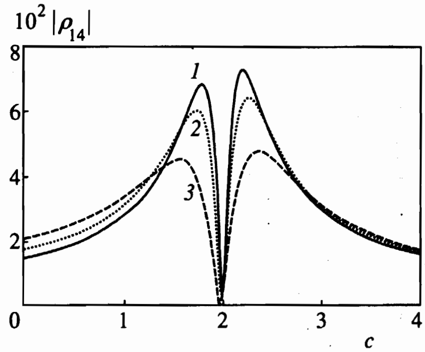

Рис. 6. Зависимости нелинейной восприимчивости (произвольные единицы) от частоты Раби c при $a = 1$, $b = 2$, $d = 4$; $\Gamma_1 = \Gamma_2 = 0.1$, $\Gamma_4 = 1$: кривая *1* — $\Gamma_3 = 0.1$; *2* — $\Gamma_3 = 0.3$; *3* — $\Gamma_3 = 1$ ($A_\nu = 0$, $\Omega_\nu = 0$)

прерывного резонансного четырехволнового смешения с увеличением частоты, достигнута в работе Хинце с соавт. [16]. При возбуждении паров молекулярного натрия лазерным излучением с длинами волн $\lambda_a = 655$, $\lambda_b = 756$, $\lambda_d = 532$ нм и мощностями порядка 100 мВт получена мощность 0.1 мВт на длине волны $\lambda_c = 480$ нм. Этого недостаточно для наблюдения эффекта, однако мощность генерируемой волны может быть повышена с помощью стабилизации частоты возбуждающего излучения. Можно получить значительно более сильные поля в импульсном режиме. Импульсное повышение эффективности четырехволнового смешения в пять раз за счет электромагнитно-индуцированной прозрачности наблюдалось недавно Дорманом и Марангосом [8] на уровнях криптона.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе мы обращаем внимание на один новый когерентный эффект — расщепление непоглощающего состояния в четырехуровневой системе. Целью работы было показать, что эффект существенно меняет зависимости населенностей и нелинейной восприимчивости от частот и амплитуд волн. Обнаружено и подтверждено численным расчетом, что при определенных условиях в этих зависимостях могут появляться двойные узкие глубокие провалы. Для экспериментальной проверки эффекта требуются высокие интенсивности всех четырех полей.

В заключение автор выражает признательность коллегам С. А. Бабину, Е. В. Подивилову, М. Г. Степанову и А. И. Черных за полезные обсуждения. Настоящая работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (гранты 96-02-00069, 96-15-96642) и программами Министерства науки и технологий «Оптика. Лазерная физика» (1.53) и «Фундаментальная спектроскопия» (08.02.32).

Литература

1. А. Б. Будницкий, А. К. Попов, Опт. и спектр. **29**, 1032 (1970).
2. M. Jain, H. Xia, G. Y. Yin, A. Merriam, and S. Harris, Phys. Rev. Lett. **77**, 4326 (1996).
3. J. Marangos, N. Shen, H. Ma, M. Hutchinson, and J. Connerade, JOSA B **7**, 1254 (1990).

4. A. Apolonsky, S. Baluschev, U. Hinze, E. Tiemann, and B. Wellegehausen, Appl. Phys. B **64**, 435 (1997).
5. S. Babin, U. Hinze, E. Tiemann, and B. Wellegehausen, Opt. Lett. **21**, 1186 (1996).
6. S. E. Harris, J. E. Field, and A. Imamoglu, Phys. Rev. A **64**, 1107 (1990).
7. J. Petch, C. Keitel, P. Knight, and J. Marangos, Phys. Rev. A **53**, 543 (1996).
8. C. Dorman and J. P. Marangos, Phys. Rev. A **58**, 4121 (1998).
9. E. Arimondo, in *Progress in Optics*, Elsevier Science B. V., Amsterdam (1996), Vol. 35, p. 257.
10. Б. Д. Агапьев, М. Б. Горный, Б. Г. Матисов, Ю. В. Рождественский, УФН **163**(9), 1 (1993).
11. O. Kocharovskaya and P. Mandel, Phys. Rev. A **42**, 523 (1990).
12. D. Coppeta, P. Kelley, P. Harshman, and T. Gustavson, Phys. Rev. A **53**, 925 (1996).
13. N. Chencinski, W. M. Schreiber, A. M. Levine, and Y. Prior, Phys. Rev. A **42**, 2839 (1990).
14. J. Lin, A. Rubiera, and Y. Zhu, Phys. Rev. A **52**, 4882 (1995).
15. S. A. Babin, E. V. Podivilov, and D. A. Shapiro, Письма в ЖЭТФ **66**, 777 (1997).
16. U. Hinze, L. Meyer, A. Apolonskii, S. Babin, E. Tiemann, and B. Wellegehausen, in *Proc. European Quantum Electronics Conference (Glasgow, 14–18 Sep. 1998). Technical Digest, QTuI3.*