

ГЕНЕРАЦИЯ СЖАТЫХ ГАРМОНИК ПРИ КООПЕРАТИВНОМ РЕЗОНАНСНОМ РАССЕЯНИИ ИНТЕНСИВНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ДИПОЛЬНЫМИ МОЛЕКУЛАМИ

*В. А. Коварский**, *О. Б. Препелица*

*Институт прикладной физики Академии наук Молдовы
277028, Кишинев, Молдова*

Поступила в редакцию 1 августа 1997 г.

Рассмотрены процессы резонансного комбинационного рассеяния интенсивного электромагнитного излучения сосредоточенной системой двухуровневых молекул с постоянным дипольным моментом. Рассчитана интенсивность s -ой генерируемой гармоники в условиях насыщающего электромагнитного поля и ее статистические характеристики. Показано, что в s -ой гармонике падающего поля возникает сжатие при интенсивностях насыщающего поля.

1. ВВЕДЕНИЕ

Интерес к проблеме генерации сжатого электромагнитного излучения не ослабевает. Особое внимание вызывает получение сжатого излучения в различных спектральных диапазонах, в том числе в области вакуумного ультрафиолета. С другой стороны, наблюдение высших гармоник при воздействии коротких лазерных импульсов на атомы благородных газов, молекул и кристаллов [1–6] позволяет получать когерентное излучение в широком спектральном диапазоне.

Целью настоящей работы является исследование возможности сжатия при генерации высших гармоник на примере резонансного рассеяния электромагнитного излучения дипольными молекулами. Однофотонные процессы сжатия в кооперативной резонансной флуоресценции были рассмотрены в статье Q. V. и S. V. Lawande [7] в двухуровневых системах. Основное внимание в настоящей работе уделено процессам сжатия при возбуждении высших гармоник в результате комбинационного рассеяния. Здесь рассматривается сосредоточенная система двухуровневых молекул, имеющих в возбужденном состоянии собственный дипольный момент d_{22} и ориентированных заданным внешним полем.

Многофотонные процессы при резонансном рассеянии света отдельной молекулой рассматривались ранее в работе Коварского и Перельмана [8]. В отличие от [8] нами исследуются эффекты кооперативного рассеяния, учитывающие наличие как сильного электромагнитного поля, так и возможность кооперативной спонтанной люминесценции. При этом предполагается, что при генерации s -ой гармоники условия сосредоточенности системы не нарушаются. Как показано ниже, величина сжатия при кооперативной люминесценции в области жесткого ультрафиолета является существенно немонотонной функцией от расстройки резонанса и интенсивности рассеиваемого света и

* E-mail: exciton@cc.acad.md

растет с числом молекул в системе вплоть до условий, при которых нарушается справедливость использования сосредоточенной модели. Преимуществом предлагаемого многофотонного способа генерации высших гармоник сжатого излучения по отношению к однофотонному случаю [7] применительно к области вакуумного ультрафиолета является использование реально достижимых частот Раби. Немонотонный характер эффекта сжатия обусловлен вкладом переизлучения фотонов при взаимодействии дипольных моментов \mathbf{d}_{22} с электромагнитным полем, определяемым безразмерным параметром $\rho > 1$:

$$\rho = \frac{\mathbf{E}_0 \mathbf{d}_{22}}{\hbar \omega_0}.$$

Здесь \mathbf{E}_0 — амплитуда, ω_0 — частота падающего излучения (вектор электрической составляющей линейно поляризованной волны выбран вдоль дипольного момента \mathbf{d}_{22} ориентированных молекул).

2. ОСНОВНЫЕ УРАВНЕНИЯ ДЛЯ МАТРИЦЫ ПЛОТНОСТИ СИСТЕМЫ ОРИЕНТИРОВАННЫХ ДИПОЛЬНЫХ МОЛЕКУЛ ВО ВНЕШНЕМ ЭЛЕКТРОМАГНИТНОМ ПОЛЕ

Гамильтониан системы N ориентированных дипольных молекул во внешнем электромагнитном поле для сосредоточенной системы ($\lambda \gg l$, $\lambda = 2\pi c/\omega$, l — линейные размеры системы) имеет вид

$$H = H_0^{(M)} + H_0^{(ph)} + V(t) + W(t) + H_{int}, \quad (1)$$

$$H_0^{(M)} = \hbar \omega_{21} R_z, \quad H_0^{(ph)} = \sum_{\mathbf{k}} \hbar \omega_{\mathbf{k}} b_{\mathbf{k}}^+ b_{\mathbf{k}},$$

$$V(t) = (\mathbf{E}_0 \mathbf{d}_{22}) R_z \cos \omega_0 t, \quad W(t) = (\mathbf{E}_0 \mathbf{d}_{21})(R^+ + R^-) \cos \omega_0 t,$$

$$H_{int} = i \sum_{\mathbf{k}} (\mathbf{g}_{\mathbf{k}} \mathbf{d}_{21})(R^+ + R^-)(b_{\mathbf{k}}^+ - b_{\mathbf{k}}).$$

Здесь ω_{21} — частота перехода между выделенными состояниями молекулы, образующими двухуровневую систему, $\mathbf{g}_{\mathbf{k}} = \sqrt{2\pi \hbar \omega_{\mathbf{k}} / V} \mathbf{e}_{\lambda}$, V — объем квантования, \mathbf{e}_{λ} — единичный вектор поляризации, R^{\pm} , R_z — кооперативные спиновые операторы, удовлетворяющие правилам коммутации:

$$[R^+, R^-] = 2R_z, \quad [R_z, R^{\pm}] = \pm R^{\pm},$$

$b_{\mathbf{k}}^+(b_{\mathbf{k}})$ — бозе-операторы электромагнитного поля.

В дальнейшем удобно перейти к представлению Фарри [9]. При этом член $V(t)$ учитывается точным образом в гамильтониане нулевого приближения, после несложных преобразований запишем гамильтониан (1) в представлении Фарри:

$$\tilde{H} = H_0^{(M)} + H_0^{(ph)} + \tilde{W}(t) + \tilde{H}_{int},$$

$$\tilde{W}(t) = (\mathbf{E}_0 \mathbf{d}_{21}) (R^+ \exp(i\rho \sin \omega_0 t) + R^- \exp(-i\rho \sin \omega_0 t)) \cos \omega_0 t,$$

$$\tilde{H}_{int} = i \sum_{\mathbf{k}} (\mathbf{g}_{\mathbf{k}} \mathbf{d}_{21}) (R^+ \exp(i\rho \sin \omega_0 t) + R^- \exp(-i\rho \sin \omega_0 t)) (b_{\mathbf{k}}^+ - b_{\mathbf{k}}).$$

Введем матрицу плотности атомной подсистемы $\sigma(t) = \text{Sp } \chi(t)$, где $\chi(t)$ — полная матрица плотности, шпур берется по переменным фотонной подсистемы.

Используя метод проекционного оператора (см., например, [10]) и ограничившись нижайшим порядком по взаимодействию с вакуумом фотонного поля, найдем уравнение движения для матрицы плотности атомной подсистемы:

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma(t)}{dt} &= i\delta [\sigma(t), R_z] + i\Omega_{n_0} [\sigma(t), R^+ + R^-] + a ([R^-, \sigma(t)R^+] + [R^- \sigma(t), R^+]) - \\ &\quad - b ([R^-, R^+ \sigma(t)] + [\sigma(t)R^-, R^+]), \\ \delta &= \omega_{21} - n_0 \omega_0, \quad \Omega_{n_0} = \omega_{21} \frac{|\mathbf{d}_{21}|}{|\mathbf{d}_{22}|} J_{n_0}(\rho), \end{aligned} \tag{2}$$

$$a = \frac{1}{2\tau_{sp}} \sum_{m=1}^{\infty} \left(\frac{m}{n_0}\right)^3 J_{m-n_0}^2(\rho), \quad b = \frac{1}{2\tau_{sp}} \sum_{m=1}^{\infty} \left(\frac{m}{n_0}\right)^3 J_{m+n_0}^2(\rho),$$

где n_0 — параметр резонансности, равный целой части отношения ω_{21}/ω_0 , δ — расстройка резонанса,

$$\frac{1}{\tau_{sp}} = \frac{4}{3} \frac{\omega_{21}^3}{\hbar c^3} |\mathbf{d}_{21}|^2$$

— вероятность однофотонного спонтанного распада возбужденного состояния.

Уравнение (2) получено при условии $\rho < 2n_0$, а также $(\mathbf{E}_0 \mathbf{d}_{21})/\hbar\omega_{21} \ll 1$, что позволило рассмотреть взаимодействие дипольного момента \mathbf{d}_{21} с внешним электромагнитным полем в резонансном приближении. Легко видеть, что уравнение (2) при $\mathbf{d}_{22} = 0$ переходит в хорошо известный результат [11]. Константы a и b характеризуют скорости обеднения возбужденного и основного уровней, соответственно. Константа b при $\mathbf{d}_{22} = 0$ равна нулю и является специфической для рассматриваемых обобщенных двухуровневых систем с $\mathbf{d}_{22} \neq 0$. Появление нелинейных зависимостей от интенсивности внешнего электромагнитного поля вида $J_m^2(\rho)$ ($J_m(\rho)$ — функция Бесселя действительного аргумента) связано с процессами переизлучения фотонов и только в предельном случае $\rho \ll 1$ отвечает результатам теории возмущений с минимально необходимым числом фотонов для данного физического процесса.

3. СТАТИСТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ГЕНЕРИРУЕМЫХ ГАРМОНИК

Рассмотрим мощность электромагнитного излучения, генерируемого квантовой системой:

$$P = \sum_{\mathbf{k}} \hbar\omega_{\mathbf{k}} \frac{d}{dt} \langle b_{\mathbf{k}}^+ b_{\mathbf{k}} \rangle. \tag{3}$$

Запишем уравнение движения для бозевских переменных, полученное в результате формального решения соответствующего уравнения Гейзенберга:

$$b_{\mathbf{k}}^+(t) = b_{\mathbf{k}}^+(0) \exp(i\omega_{\mathbf{k}}t) + \frac{(\mathbf{g}_{\mathbf{k}} \mathbf{d}_{21})}{\hbar} \int_0^t d\tau \exp(i\omega_{\mathbf{k}}\tau) \times \\ \times (R^+(t-\tau) \exp(i\rho \sin \omega_0(t-\tau)) + R^-(t-\tau) \exp(-i\rho \sin \omega_0(t-\tau))). \quad (4)$$

Подставим выражение (4) в формулу (3), воспользуемся марковским приближением, соответствующим пренебрежению запаздыванием в «медленной» части спиновых операторов:

$$R^{\pm}(t-\tau) \approx R^{\pm}(t) \exp(\mp i\omega_{21}\tau).$$

После несложных преобразований получим

$$P = \frac{\hbar\omega_{21}}{\tau_{sp}} \sum_{s=1}^{\infty} \left(\frac{s}{n_0}\right)^4 (J_{s-n_0}^2(\rho) \langle R^+ R^- \rangle + J_{s+n_0}^2(\rho) \langle R^- R^+ \rangle),$$

где s обозначает номер гармоники, излученной на частоте $\omega = s\omega_0$. Для нахождения численного значения P необходимо знание корреляторов $\langle R^+ R^- \rangle$ и $\langle R^- R^+ \rangle$, вычисление которых для системы, состоящей из большого числа молекул, в общем случае сопряжено с серьезными математическими трудностями, связанными с необходимостью решения уравнения (2). Поэтому далее мы ограничимся стационарным случаем и областью насыщающих полей $\Omega_{n_0} \gg N(a-b)$ (ниже будет дано разъяснение по поводу совместимости этих приближений). Поскольку в этом случае $\langle R^+ R^- \rangle$ и $\langle R^- R^+ \rangle$ одного порядка, мы можем заключить, что зависимость интенсивности излучения от номера гармоники определяется в основном порядком функции Бесселя, достигая максимальной величины при условии $s \sim \rho + n_0$. При $s > \rho + n_0$ функция Бесселя резко убывает, что соответствует cut-off эффекту в теории генерации высших гармоник атомами. Для определения статистических свойств рассеянного излучения рассмотрим дисперсию квадратур электромагнитного поля [12]:

$$\langle (\Delta M_i)^2 \rangle = \langle M_i^2 \rangle - \langle M_i \rangle^2, \quad i = 1, 2,$$

$$M_1 = \frac{1}{2}(b_{\mathbf{k}}^+ + b_{\mathbf{k}}), \quad M_2 = \frac{i}{2}(b_{\mathbf{k}}^+ - b_{\mathbf{k}}),$$

где угловыми скобками обозначено усреднение с полной матрицей плотности $\chi(t)$, а символом $\langle f \rangle$ — нормальное упорядочение. Неравенство нулю дисперсии $\langle (\Delta M_i)^2 \rangle$ ($i = 1, 2$) является достаточным условием существования сжатия в спектре рассеянного света. После исключения с помощью уравнения (4) бозе-переменных и использования марковского приближения, получим

$$\langle (\Delta M_{1,2})^2 \rangle_s = \pm \frac{|\mu|^2}{4} (J_{s-n_0}^2(\rho) + J_{s+n_0}^2(\rho)) [\langle R^+ R^+ \rangle + \langle R^- R^- \rangle - \langle R^+ \rangle^2 - \langle R^- \rangle^2] \mp \\ \mp \frac{|\mu|^2}{4} [J_{s-n_0}^2(\rho) (\langle R^+ R^- \rangle - \langle R^+ \rangle \langle R^- \rangle) + J_{s+n_0}^2(\rho) (\langle R^- R^+ \rangle - \langle R^+ \rangle \langle R^- \rangle)],$$

где s — номер гармоники, μ — геометрический фактор [11].

Следуя работам [7, 13], перейдем к новым квазиспиновым операторам S^\pm, S_z :

$$[S^+, S^-] = 2S_z, \quad [S_z, S^\pm] = \pm S^\pm,$$

связанным с прежним каноническим преобразованием, определяемым соотношениями

$$R^+ = \Delta_1 S^+ - \Delta_2 S^- + 2\Delta_3 S_z, \quad R^- = (R^+)^+,$$

$$R_z = (\Delta_1 - \Delta_2)S_z - \Delta_3(S^+ + S^-),$$

$$\Delta_1 = \cos^2 \eta, \quad \Delta_2 = \sin^2 \eta, \quad \Delta_3 = \sin \eta \cos \eta, \quad \text{ctg } 2\eta = \frac{\delta}{2\Omega_{n_0}}.$$

В новых квазиспиновых переменных искомые величины — мощность излучения и дисперсия квадратур электромагнитного поля — примут вид

$$\begin{aligned} \langle (\Delta M_{1,2})^2 \rangle_s = & \pm \frac{|\mu|^2}{2} (J_{s-n_0}^2(\rho) + J_{s+n_0}^2(\rho)) [4\Delta_3^2 (\langle S_z^2 \rangle - \langle S_z \rangle^2) - \Delta_1 \Delta_2 (\langle S^+ S^- \rangle + \\ & + \langle S^- S^+ \rangle - 2\langle S^+ \rangle \langle S^- \rangle)] \mp \frac{|\mu|^2}{2} [J_{s-n_0}^2(\rho) (\Delta_1^2 (\langle S^+ S^- \rangle - \langle S^+ \rangle \langle S^- \rangle) + \\ & + \Delta_2^2 (\langle S^- S^+ \rangle - \langle S^+ \rangle \langle S^- \rangle) + 4\Delta_3^2 (\langle S_z^2 \rangle - \langle S_z \rangle^2)) + J_{s+n_0}^2(\rho) (\Delta_1^2 (\langle S^- S^+ \rangle - \langle S^+ \rangle \langle S^- \rangle) + \\ & + \Delta_2^2 (\langle S^+ S^- \rangle - \langle S^+ \rangle \langle S^- \rangle) + 4\Delta_3^2 (\langle S_z^2 \rangle - \langle S_z \rangle^2))] , \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} P = & \frac{\hbar\omega_{21}}{\tau_{sp}} \sum_{s=1}^{\infty} \left(\frac{s}{n_0}\right)^4 [(\Delta_1^2 J_{s-n_0}^2(\rho) + \Delta_2^2 J_{s+n_0}^2(\rho)) \langle S^+ S^- \rangle + \\ & + (\Delta_2^2 J_{s-n_0}^2(\rho) + \Delta_1^2 J_{s+n_0}^2(\rho)) \langle S^- S^+ \rangle + 4\Delta_3^2 (J_{s-n_0}^2(\rho) + J_{s+n_0}^2(\rho)) \langle S_z^2 \rangle] . \end{aligned} \quad (6)$$

Будем считать выполненным условие $\Omega_{n_0} \gg N(a-b)$, тогда в пренебрежении малыми слагаемыми (порядка $N(a-b)/\Omega_{n_0}$) уравнение (2) примет вид

$$\begin{aligned} \frac{d\tilde{\sigma}(t)}{dt} = & i\tilde{\Omega}_{n_0} [\tilde{\sigma}(t), S_z] + \tilde{a} ([S^-, \tilde{\sigma}(t)S^+] + [S^- \sigma(t), S^+]) - \\ & - \tilde{b} ([S^-, S^+ \tilde{\sigma}(t)] + [\tilde{\sigma}(t)S^-, S^+]) + \tilde{\gamma} ([S_z \tilde{\sigma}(t), S_z] + [S_z, \tilde{\sigma}(t)S_z]) , \end{aligned} \quad (7)$$

$$\tilde{\Omega}_{n_0} = \sqrt{\frac{1}{4}\delta^2 + \Omega_{n_0}^2}, \quad \tilde{a} = \Delta_1^2 a + \Delta_2^2 b,$$

$$\tilde{b} = \Delta_2^2 a + \Delta_1^2 b, \quad \tilde{\gamma} = \Delta_3^2(a+b).$$

Нетрудно заметить, что стационарное решение уравнения (7) в базисе состояний Дике имеет диагональную форму и может быть записано в следующем виде [7]:

$$\tilde{\sigma}_{st} = Z^{-1} \exp(-\alpha S_z), \quad (8)$$

где Z — нормировочная константа, $\alpha = \ln(\tilde{a}^2/\tilde{b}^2)$.

Здесь уместно сделать следующее замечание. В уравнениях (2), (7) учитывается только распад возбужденного состояния, связанный с переходами в основное состояние. По существу это означает строго двухуровневое приближение, поскольку пренебрегается распадами в какие-либо «третьи» состояния, вероятность перехода в которые есть Γ . Двухуровневое приближение оказывается оправданным на временах $t \ll \Gamma^{-1}$. Таким образом, стационарное решение (8) является справедливым во временном интервале $(a-b)^{-1} \ll t \ll \Gamma^{-1}$.

С помощью решения (8) найдем средние значения, содержащиеся в формулах (5)–(7):

$$\langle S^+ S^- \rangle = -\langle S_{11}^2 \rangle + (N-1)\langle S_{11} \rangle + N, \quad \langle S^\pm \rangle = 0,$$

$$\langle S^- S^+ \rangle = -\langle S_{11}^2 \rangle + (N+1)\langle S_{11} \rangle,$$

$$\langle S_z^2 \rangle = \langle S_{11}^2 \rangle - N\langle S_{11} \rangle + \frac{N^2}{4},$$

где

$$\langle S_{11}^2 \rangle = \frac{NL^{N+3} - (2N^2 + 2N + 1)L^{N+2} + (N+1)^2 L^{N+1} - L^2 - L}{Z(L-1)^3},$$

$$\langle S_{11} \rangle = \frac{NL^{N+2} - (N+1)L^{N+1} + L}{Z(L-1)^2}, \quad L = \frac{\tilde{a}}{\tilde{b}}.$$

Полученные выражения для корреляторов позволяют рассчитать мощность генерируемых гармоник и исследовать их статистические свойства в условиях насыщающего поля. Отметим, что спектральное распределение интенсивности излучения является сильно нелинейной (немонотонной) функцией частот $s\omega_0$ ($s = 1, 2, \dots$) и напряженности приложенного электромагнитного поля (рис. 1). При этом интенсивность некоторых высших гармоник может превосходить интенсивность излучения на основной частоте ω_0 (рис. 1). Численный анализ показывает (рис. 2), что степень сжатия для оптимальной гармоники $s \sim \rho + n_0$ достигает наибольшего значения при $(\delta/2\Omega_{n_0})^2 \sim 0.36$. Величина этого сжатия того же порядка, что и при однофотонной резонансной флуоресценции на частоте $\omega = s\omega_0$ [7]. Но при указанной однофотонной флуоресценции должно было бы быть выполнено условие насыщающего поля: частота Раби много больше произведения числа излучателей в системе на вероятность распада возбужденного состояния отдельного излучателя. Условие насыщающего поля в задаче о статистических свойствах рассеянного излучения существенно, так как в слабых полях имеет место когерентное рассеяние света, когда статистические свойства приложенного и рассеянного электромагнитных полей тождественны. Поэтому областью интенсивностей приложенного электромагнитного поля, где следует ожидать преобразования классического света в неклассический (сжатый), является именно область насыщающего поля. При однофотонной флуоресценции на частоте $\omega = s\omega_0$ выполнение условия насыщения требует очень больших частот Раби (так как вероятность распада возбужденного уровня пропорциональна $(s\omega_0)^3$), что для столь высоких частот практически невыполнимо. С другой стороны, в предлагаемой нами схеме условия насыщения должно быть выполнено для энергетической щели $\omega_{21} \approx n_0\omega_0$, $n_0 \ll s$. Именно это отличие позволяет

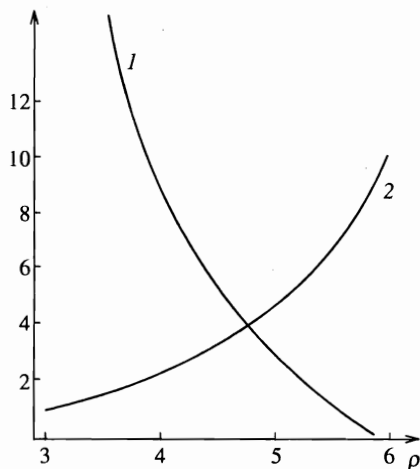


Рис. 1

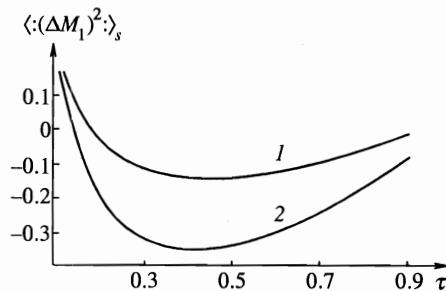


Рис. 2

Рис. 1. Отношение мощности излучения на частотах $8\omega_0$ (1) и $10\omega_0$ (2) к мощности излучения на частоте ω_0 как функция параметра ρ при $n_0 = 5$

Рис. 2. Зависимость $\langle (\Delta M_1)^2 \rangle_s$ от параметра $\tau = (\delta/2\Omega_{n_0})^2$ для «оптимальной» гармоники $s = 10$ ($\omega = 10\omega_0$) для значений $n_0 = 5, \rho = 6, N = 20$ (1), 50 (2)

реализовать сжатие высокочастотных гармоник при относительно невысоких значениях интенсивности падающего излучения. Теория, однако, не охватывает случая более высоких значений напряженности поля, при которых длина волны оптимальной гармоники становится меньше размеров исследуемой системы.

Литература

1. A. L'Huillier, K. J. Schafer, and K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2200 (1991).
2. A. L'Huillier and P. Balcon, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 774 (1993).
3. W. Becker, S. Long, and J. K. McIver, *Phys. Rev. A* **50**, 1540 (1994).
4. C. T. Cheh, Y. Wu, and A. Jiang, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 616 (1989).
5. Y. Wu, T. Sasaki, and S. Nakai, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 2614 (1993).
6. L. J. Fransinski, M. Stankiewicz, and P. A. Hatherly, *Phys. Rev. A* **46**, R6789 (1992).
7. Q. V. Lawande and S. V. Lawande, *Phys. Rev. A* **38**, 800 (1988).
8. В. А. Коварский, Н. Ф. Перельман, *ЖЭТФ* **60**, 509 (1971).
9. В. Б. Берестецкий, Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Квантовая электродинамика*, Наука, Москва (1989).
10. Ke-Hsueh Li, *Phys. Rep.* **134**, 1 (1986).
11. G. S. Agarwal, *Quant. Opt.* **70**, (1974).
12. R. London and P. L. Knight, *J. Mod. Optics* **34**, 759 (1986).
13. A. S. Shumovsky and Tran Quang, *J. Phys. B* **22**, 131 (1989).