

# О НЕЛИНЕЙНОМ ВЛИЯНИИ ОСТАТОЧНОГО ДОПЛЕРОВСКОГО СДВИГА НА РАЗНОСТНЫЙ СИГНАЛ НАСЕЛЕННОСТЕЙ ВОЗБУЖДЕННОГО И ОСНОВНОГО СОСТОЯНИЙ ДВУХФОТОННОГО РЕЗОНАНСА В ГАЗЕ

*А. П. Аммосов, Г. В. Волошин, К. А. Баранцев, А. Н. Литвинов\**

*Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого  
195251, Санкт-Петербург, Россия*

Поступила в редакцию 14 октября 2024 г.,  
после переработки 21 ноября 2024 г.  
Принята к публикации 26 ноября 2024 г.

Исследуется влияние движения атомов на населенности их возбужденного и основного состояний в условиях двухфотонного резонанса, возбуждаемого посредством  $\Lambda$ -схемы, с учетом невырожденности основного состояния. Показано, что населенность возбужденного состояния изменяется при перестановке местами значений амплитуд двух возбуждающих полей на оптических переходах. Таким образом, система не проявляет свойства симметрии относительно взаимной замены частот Раби двух возбуждаемых каналов. Обнаружено, что имеет место инверсия населенности между основными состояниями сверхтонкой структуры при одинаковых частотах Раби. Определены области значений частот Раби, скоростей атомов и двухфотонных отстройек, в которых данные эффекты проявляются наиболее сильно.

DOI: 10.31857/S0044451025030034

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Двухфотонные резонансы в газе позволяют получить узкие линии, так как свободны от доплеровского уширения оптического перехода. Одним из способов наблюдения двухфотонного резонанса является возбуждение атомов бихроматическим лазерным излучением оптического диапазона — так называемая  $\Lambda$ -схема возбуждения. В этом случае имеет место эффект когерентного пленения населенностей (КПН) [1–4]. Большой интерес к эффекту КПН обусловлен тем, что он позволяет получить линию резонанса шириной в несколько сотен, и даже десятков герц. Благодаря узкой линии резонанса, эффект КПН находит широкое применение в квантовых стандартах частоты [5–9], магнитометрах [10–12], в области квантовой информатики [13, 14].

В газовых ячейках в отсутствие буферного газа атомы щелочного металла могут двигаться практически без столкновений. В этом случае форму резонанса КПН главным образом определяют эффекты, вызванные движением атомов. При этом регистрируемый сигнал формируется атомами от всех скоростных групп. Однако в пучковом стандарте частоты [15–18] может быть реализована такая ситуация, когда имеет место селекция по скоростям атомов. Возможность исследовать взаимодействие лазерного излучения с атомами из отдельных скоростных групп позволяет более детально изучить эффекты, обусловленные движением.

В работе [19] на основе метода спектроскопии пробного поля показано, что движение атомов приводит к сужению линии двухфотонного резонанса в газе. Экспериментально этот эффект подтвержден в работе [20]. Эффект лазерно-индуцированного сужения, возникающий в движущихся атомах, был впервые рассмотрен в [21] и потом экспериментально исследован в условиях резонанса электромагнитно-индуцированной прозрачности в [22]. Исследование высококонтрастных субдоплеровских резонансов с использованием двух встречных двухчастотных лазерных лучей выполнено в [23]. Особенности совместного влияния движения атомов и сверхтонкого расщепления

\* E-mail: andrey.litvinov@mail.ru

возбужденного состояния на форму резонанса когерентного пленения населенностей в разреженном газе рассмотрены в [24]. Авторами работы показано, что при наличии сверхтонкой структуры возбужденного уровня движение атомов приводит к световому сдвигу КПН-резонанса. Учет влияния движения и столкновений со стенками приводит к существенному изменению формы спектра, появлению гребенки дополнительных резонансов, а также сдвигам «основного» резонанса КПН [25]. В работе [26] при рассмотрении влияния движения атомов в ячейке без буферного газа показано, что при диффузионном типе отражения от стенок ячейки сдвиг КПН-резонанса может менять знак, а в определенной области длин ячеек имеет место сложная «двугорбая» структура спектра КПН. Влияние свободного движения атомов на эффекты, зависящие от плотности атомов, в нелинейной лазерной спектроскопии резонансных газовых сред проанализировано в [27, 28]. Авторами установлено, что в этом случае возникает существенная деформация доплеровского резонансного контура (сдвиг и асимметрия).

Часто при теоретическом описании формирования резонансов КПН в среде движущихся атомов разностью волновых чисел резонансных компонент излучения пренебрегают. Однако, как будет показано в данной работе, учет отбрасываемого таким образом остаточного доплеровского сдвига, обусловленного невырожденностью основного состояния атомов, приводит к качественно новым результатам, существенно изменяющим картину эффекта КПН в движущихся атомах.

Цель настоящей работы — показать, что за исследованием влияния движения атомов на двухфотонные резонансы в газе, даже в простой модели  $\Lambda$ -атома, скрывается довольно обширная физика, приводящая к различным нелинейным оптическим эффектам.

В данной работе на основе аппарата матрицы плотности получены аналитические выражения для разностного сигнала КПН-резонанса и инверсии населенности между основными состояниями сверхтонкой структуры в условиях КПН-резонанса, соответствующего различным скоростным группам атомов. На основе анализа этих величин обнаружено, что имеет место ряд новых явлений, связанных с нелинейным проявлением остаточного эффекта Доплера. Обнаруженные особенности в разностном сигнале поглощения и инверсии населенности не были описаны ранее и представляют интерес для экспериментального исследования данных явле-

ний. Отметим, что нелинейный вклад от остаточного доплеровского уширения, связанного с движением атомов, носит фундаментальный характер и лежит в основе дальнейшего наблюдения целого ряда нелинейных оптических эффектов в газе в условиях двухфотонных резонансов.

## 2. МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

Рассмотрим ансамбль щелочных атомов в поле плоской электромагнитной волны с двумя несущими частотами. Волна распространяется вдоль оси  $z$  и вектор ее напряженности может быть записан следующим образом:

$$\mathbf{E}(z, t) = \mathbf{e}_1 E_1 \exp[-i(\nu_1 t - k_1 z)] + \mathbf{e}_2 E_2 \exp[-i(\nu_2 t - k_2 z)] + \text{с. с.}, \quad (1)$$

где  $\mathbf{e}_j$  — единичный вектор вдоль направления поляризации,  $E_j$  — комплексная амплитуда напряженности электрического поля,  $k_j$  — волновое число,  $\nu_j$  — частота,  $j = 1, 2$ .

Будем рассматривать модель, в которой атомы имеют три энергетических уровня: два основных —  $|1\rangle$  и  $|2\rangle$ , соответствующих сверхтонкому расщеплению  $s$ -состояния, и один возбужденный —  $|3\rangle$ , соответствующий  $p$ -состоянию (рис. 1). Частоты поля  $\nu_1$  и  $\nu_2$  близки к частотам переходов  $\omega_1$  и  $\omega_2$  с отстройками  $\Delta_1 = \nu_1 - \omega_1$  и  $\Delta_2 = \nu_2 - \omega_2$  соответственно, а  $\omega_{hfs}$  — частота сверхтонкого перехода между уровнями  $|1\rangle$  и  $|2\rangle$ . Обозначим двухфотонную отстройку  $\delta_R = \Delta_1 - \Delta_2$ , а разность волновых чисел —  $\Delta k = k_1 - k_2$ .

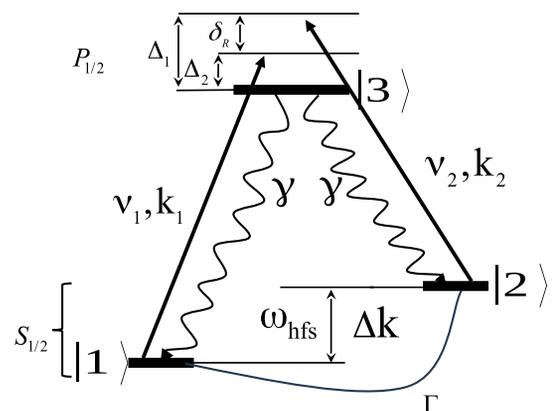


Рис. 1. Схема энергетических уровней атомов и возбуждаемые переходы

Состояние такой системы описывается с помощью аппарата матрицы плотности в вигнеровском представлении [29]:

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{\mathbf{p}}{m} \nabla\right) \tilde{\rho}(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t) = -\frac{i}{\hbar} [\hat{H}, \tilde{\rho}(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t)] + \hat{R}\{\tilde{\rho}(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t)\}, \quad (2)$$

где  $\mathbf{p} = m\mathbf{v}$  — импульс атома ( $m$  — масса атома,  $\mathbf{v}$  — скорость поступательного движения атома),  $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}$ ,  $\hat{H}_0$  — гамильтониан внутренней энергии атома в отсутствие электромагнитного поля, а  $\hat{V}$  — оператор взаимодействия атомов с электромагнитным полем в дипольном приближении. Супероператор  $\hat{R}$  феноменологически учитывает спонтанную релаксацию атомов, которая определяется следующими константами релаксации:  $\gamma$  — скорость спонтанного распада возбужденного состояния,  $\gamma'$  — скорость распада оптических когерентностей, которая для лоренцевского контура спектра лазера с шириной  $\Gamma_L$  может быть определена как

$$\gamma' = \gamma + \Gamma_L,$$

$\Gamma_{12}$  — поперечная скорость релаксации основного состояния.

Будем рассматривать только проекцию скорости атома на направление лазерного излучения ( $\mathbf{v} \rightarrow v_z$ ) и полагать, что атомы имеют максвелловское распределение по скоростям:

$$M(v_z) = \frac{1}{\sqrt{\pi}v_T} \exp\left\{-\frac{v_z^2}{v_T^2}\right\},$$

где  $v_T = \sqrt{2k_B T/m}$  — наиболее вероятная скорость,  $k_B$  — постоянная Больцмана,  $T$  — температура газа. Тогда условие нормировки имеет следующий вид:

$$\sum_i \tilde{\rho}_{ii}(v_z) = M(v_z).$$

Выделим в

$$\tilde{\rho}_{ii}(v_z) = M(v_z)\rho_{ii}(v_z)$$

множитель  $\rho_{ii}(v_z)$ , который отвечает за изменение населенностей, вызванное электромагнитным полем.

Будем рассматривать частоты Раби двух компонент излучения  $\Omega_{1,2}$ , ограниченные условием  $\Omega_{1,2} \ll \gamma, \gamma'$ , поэтому  $\rho_{33} \ll \rho_{11}, \rho_{22}$  и мы можем использовать адиабатическое приближение. Для

простоты аналитических выражений положим  $\Gamma_{12} = 0$ . Мы также будем пренебрегать многократным рассеянием фотонов в среде [30–33], коллективными эффектами [34–37] и положим, что среда является оптически тонкой. Рассмотрим достаточно протяженную среду для того, чтобы исключить существенное влияние эффекта Дике [38], других граничных эффектов [39–41], а также особенностей, связанных с поглощением излучения в среде [42]. Для удобства аналитических выкладок в выражениях, где встречается сумма  $(k_1 + k_2)$ , положим

$$k_1 \approx k_2 = k, \quad \Delta_1 \approx \Delta_2 = \Delta_L.$$

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ

#### 3.1. Сигнал КПН-резонанса

В настоящем разделе анализируется спектр поглощения КПН-резонанса, определенный следующим выражением:

$$\Delta\rho_{33} = \rho_{33}(\Omega_1, \Omega_2) - \rho_{33}(\Omega_2, \Omega_1).$$

В дальнейшем мы будем  $\Delta\rho_{33}$  называть разностным сигналом КПН (или двухфотонного) резонанса. В указанных в разд. 2 приближениях удается получить аналитический вид величины  $\Delta\rho_{33}$ , усредненной по скоростным группам атомов, движущихся с противоположными скоростями:

$$\overline{\Delta\rho_{33}}(v) = \frac{\Delta\rho_{33}|_{v_z=v} + \Delta\rho_{33}|_{v_z=-v}}{2}.$$

Данная зависимость определяется выражением (3) (см. ниже), где введены обозначения

$$G(v) = \frac{\gamma'^2}{\gamma'^2 + (\Delta_L - kv)^2},$$

$$F(v) = \frac{\gamma'(\Delta_L - kv)}{\gamma'^2 + (\Delta_L - kv)^2}.$$

Как можно заметить из (3), остаточный эффект Доплера приводит к кубическому вкладу в разностный сигнал КПН-резонанса.

Для того чтобы продемонстрировать влияние нелинейного вклада от остаточного эффекта Доплера, возникающего в движущихся атомах, начнем с анализа зависимости населенности возбужденного уровня от проекции скорости атомов (рис. 2). Положим  $\delta_R = 0$ , т. е. будем рассматривать двухфотонный резонанс:

$$\overline{\Delta\rho_{33}}(v) = 4 \frac{G(v)F(v)\gamma'^2}{\gamma} \frac{\Omega_1^2\Omega_2^2(\Omega_2^2 - \Omega_1^2)}{\Omega_2^2 + \Omega_1^2} \times \left( \frac{(\delta_R - v\Delta k)^3}{\left(G(v)(\Omega_2^2 + \Omega_1^2)^2 + \gamma'^2(\delta_R - v\Delta k)^2\right)^2 - 4F^2(v)\gamma'^2(\delta_R - v\Delta k)^2(\Omega_2^2 - \Omega_1^2)^2} - \frac{(\delta_R + v\Delta k)^3}{\left(G(v)(\Omega_2^2 + \Omega_1^2)^2 + \gamma'^2(\delta_R + v\Delta k)^2\right)^2 - 4F^2(v)\gamma'^2(\delta_R + v\Delta k)^2(\Omega_2^2 - \Omega_1^2)^2} \right). \quad (3)$$

Главным эффектом, который стоит отметить, является изменение населенности возбужденного состояния при перестановке значений амплитуд возбуждающих полей местами. Это означает, что разностный сигнал  $\Delta\rho_{33}$  будет отличен от нуля, что и можно наблюдать на рис. 2. Также можно видеть, что зависимости  $\rho_{33}(\Omega_1, \Omega_2, v_z)$  (штриховая кривая) и  $\rho_{33}(\Omega_2, \Omega_1, v_z)$  (штрихпунктирная кривая) несимметричны относительно проекции скорости  $v_z$ . Далее можно заметить, что разностный сигнал  $\Delta\rho_{33}(v_z)$  формируется атомами, находящимися в диапазоне скоростей  $100 < v_z < 4000$  см/с, что согласуется с работами [19, 24]. При этом вклад атомов в КРН-резонанс зависит от того, на каком из переходов  $|1\rangle \rightarrow |3\rangle$  или  $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$  частота Раби лазерного поля больше. Это приводит к тому, что населенности  $\rho_{33}(\Omega_1, \Omega_2, v_z)$  и  $\rho_{33}(\Omega_2, \Omega_1, v_z)$  в определенных скоростных группах различаются. В разностном сигнале (сплошная кривая) наблюдается диапазон скоростей (примерно в два раза уже)  $400 < v_z < 2000$  см/с, в котором имеет место ненулевое значение  $\Delta\rho_{33}(v_z)$ . Данную особенность мы свя-

зываем с влиянием нелинейного вклада от остаточного эффекта Доплера первого порядка. Это можно наблюдать, например, из выражения (3), где имеются слагаемые вида  $(\delta_R \mp v\Delta k)^3 (\Omega_1^2 - \Omega_2^2)$ , которые как раз и дают несимметричный вклад. Таким образом, данный эффект обусловлен различными вкладами атомов, имеющих противоположные проекции скорости:  $+v$  и  $-v$ . Отметим, что наблюдаемый эффект связан со свободным движением атомов и в ячейках с буферным газом не проявляется (сигнал  $\Delta\rho_{33}(v)$  будет тождественно равен нулю).

Интересным представляется проследить зависимость разностного сигнала от частот Раби. На рис. 3 а представлена зависимость разностного сигнала от  $\Omega_2$  при различных значениях  $\Omega_1$  для атомов, находящихся в скоростной группе с  $v = 1200$  см/с, соответствующей максимальному значению  $\Delta\rho_{33}(v)$ . Для частот Раби  $\Omega_1 = 1 \cdot 10^5$  с<sup>-1</sup> (штриховая кривая) можно наблюдать зависимость от  $\Omega_2$  с одним экстремумом, максимум которого соответствует  $\Omega_{2,ext} = 4 \cdot 10^5$  с<sup>-1</sup>. Аналогичная ситуация наблюдается в другом диапазоне частот Раби, когда  $\Omega_1 = 5 \cdot 10^5$  с<sup>-1</sup> (пунктирная кривая), в этом случае  $\Omega_{2,ext} = 1.7 \cdot 10^5$  с<sup>-1</sup>. В данном случае, когда  $\Omega_{1,2}/\Omega_{2,1} \geq 3$ , мы имеем дело с одним экстремумом, который соответствует наибольшему значению  $\Delta\rho_{33}(v)$ . При этом зависимости асимметричны относительно перестановки  $\Omega_1$  и  $\Omega_2$ . В случае, когда отношение частот Раби  $\Omega_{1,2}/\Omega_{2,1} \approx 2$  или  $\Omega_{1,2}/\Omega_{2,1} < 2$ , имеет место два экстремума в положительной и отрицательной областях. Знак величины  $\Delta\rho_{33}(\Omega_2)$  и положение экстремума определяются соотношением  $\Omega_{1,2}/\Omega_{2,1}$ . Таким образом, система не проявляет свойства симметрии относительно взаимной замены частоты Раби для возбуждающих каналов. Подобное поведение мы также связываем с различным вкладом в КРН-резонанс от атомов, двигающихся со скоростями  $+v$  и  $-v$ . Другими словами, мы имеем дело с нелинейным проявлением остаточного эффекта Доплера первого порядка.

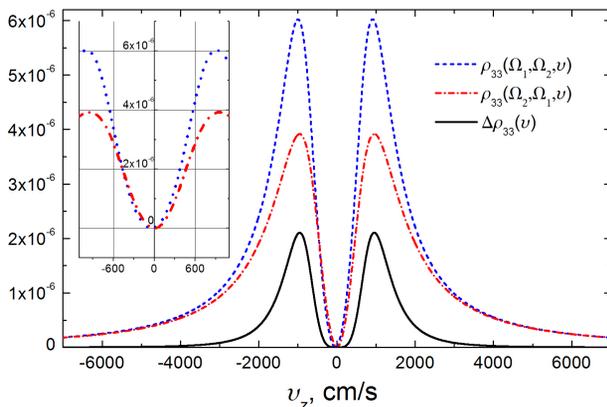


Рис. 2. Населенность возбужденного состояния в зависимости от проекции скорости  $v_z$ . Параметры расчета следующие:  $T = 50^\circ \text{C}$ ,  $\Omega_1 = 2.5 \cdot 10^5$  с<sup>-1</sup>,  $\Omega_2 = 2 \cdot 10^5$  с<sup>-1</sup>,  $\Gamma_L = 0.25\gamma$ ,  $\Delta k = 1.44$  см<sup>-1</sup>,  $\Gamma_{12} = 0$ ,  $\gamma = 1.75 \cdot 10^7$  с<sup>-1</sup>

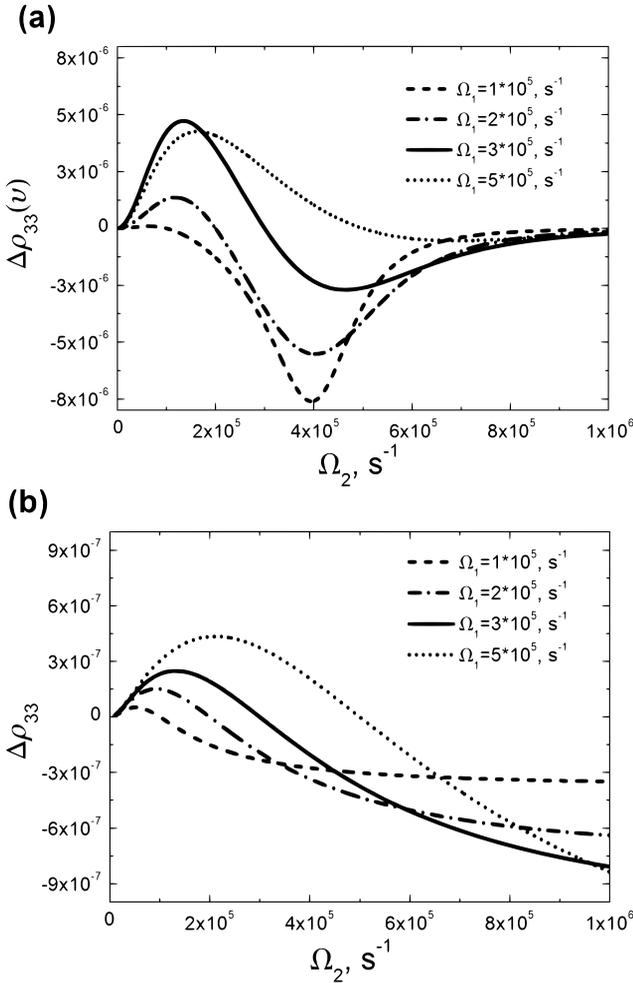


Рис. 3. а — Разностный сигнал  $\overline{\Delta\rho_{33}}$  в зависимости от частоты Раби  $\Omega_2$  для  $v = 1200$  см/с. б — Интегральный разностный сигнал  $\langle\Delta\rho_{33}\rangle$  в зависимости от частоты Раби  $\Omega_2$ . Параметры расчета следующие:  $T = 50^\circ\text{C}$ ,  $\Delta k = 1.44$  см $^{-1}$ ,  $\Gamma_{12} = 0$ ,  $\gamma = 1.75 \cdot 10^7$  с $^{-1}$

Выражение для интегрального разностного сигнала КПП-резонанса от всех скоростных групп определяется формулой

$$\langle\Delta\rho_{33}\rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} \Delta\rho_{33}(v_z)M(v_z)dv_z. \quad (4)$$

Для интегрального разностного сигнала, определяемого формулой (4), как и на рис. 3 а, имеет место немонотонная зависимость разностного сигнала от частот Раби (рис. 3 б). Данная особенность также обусловлена кубическим вкладом от остаточного эффекта Доплера.

Обратимся теперь к анализу зависимости  $\langle\Delta\rho_{33}\rangle$  от скорости распада оптических когерентностей.

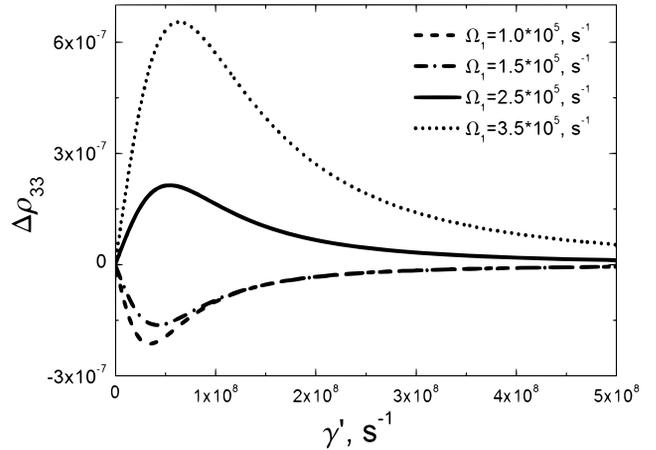
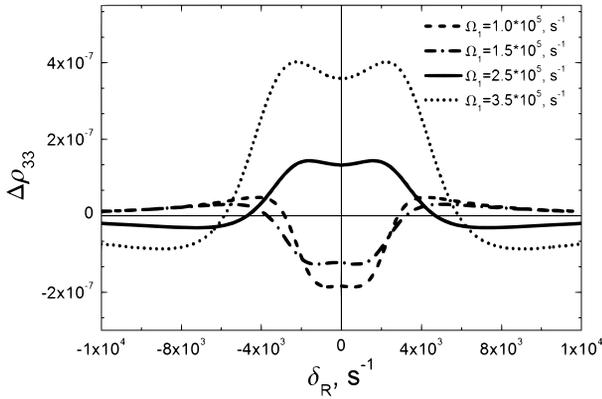


Рис. 4. Интегральный разностный сигнал  $\langle\Delta\rho_{33}\rangle$  в зависимости от  $\gamma'$  в двухфотонном резонансе  $\delta_R = 0$ ,  $\Omega_2 = 2 \cdot 10^5$  с $^{-1}$ . Параметры расчета следующие:  $T = 50^\circ\text{C}$ ,  $\Gamma_L = 0.25\gamma$ ,  $\Delta k = 1.44$  см $^{-1}$ ,  $\Gamma_{12} = 0$ ,  $\gamma = 1.75 \cdot 10^7$  с $^{-1}$

Эта зависимость представлена на рис. 4 для значений  $0.5\gamma < \Gamma_L < 30\gamma$ . На рисунке, во-первых, можно видеть, что имеет место либо положительное (сплошная и пунктирная линии), либо отрицательное (штриховая и штрихпунктирная линии) значение  $\langle\Delta\rho_{33}\rangle$  в зависимости от соотношений  $\Omega_{1,2}/\Omega_{2,1}$ . Во-вторых, имеется экстремум, который соответствует максимальному значению  $\langle\Delta\rho_{33}\rangle$  для определенных значений  $\gamma'$ . Как было сказано выше, основной вклад в наблюдаемые эффекты создается атомами, движущимися со скоростями  $100 < v < 4000$  см/с ( $10^7$  с $^{-1} < kv < 2 \cdot 10^8$  с $^{-1}$ ). Если рассмотреть случай  $\gamma' \approx \gamma$ , тогда для скоростной группы  $v \approx 100$  см/с функции  $G \rightarrow 1, F \rightarrow 0$ . С ростом скорости атомов функция  $G$  будет уменьшаться и при значениях  $v \approx 2000$  см/с она будет уже близка к нулю. Следовательно, при стремлении  $\gamma'$  к  $\gamma$  разностный сигнал  $\overline{\Delta\rho_{33}}(v)$  также будет убывать. Аналогичная ситуация наблюдается, когда  $\gamma' \gg \gamma$ . В этом случае в диапазоне  $10^7$  с $^{-1} < kv < 2 \cdot 10^8$  с $^{-1}$  с ростом  $\gamma'$  функции  $G \rightarrow 1, F \rightarrow 0$  и выражение для  $\overline{\Delta\rho_{33}}(v)$  стремится к нулю. В области промежуточных значений из определения  $G, F$  видно, что имеет место максимум. Физически это связано с тем, что соотношение между скоростью распада оптических когерентностей и частотами Раби будет определять наиболее сильное проявление эффекта КПП для различных скоростных групп. В интегральном сигнале, который учитывает вклад от всех скоростных групп, будет иметь место область значений  $3.5\gamma < \Gamma_L < 6.5\gamma$ , где  $\langle\Delta\rho_{33}\rangle$  максимальна.



**Рис. 5.** Интегральный разностный сигнал  $\langle \Delta \rho_{33} \rangle$  в зависимости от двухфотонной отстройки. Параметры расчета следующие:  $\Omega_2 = 2 \cdot 10^5 \text{ c}^{-1}$ ,  $T = 50^\circ \text{ C}$ ,  $\Gamma_L = 0.25\gamma$ ,  $\Delta k = 1.44 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\Gamma_{12} = 0$ ,  $\gamma = 1.75 \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$

Анализ зависимости  $\langle \Delta \rho_{33} \rangle$  от двухфотонной отстройки представлен на рис. 5. Здесь можно видеть, что максимальная величина  $\langle \Delta \rho_{33} \rangle$  наблюдается в области КПН-резонанса. В зависимости от соотношений  $\Omega_{1,2}/\Omega_{2,1}$  величина  $\Delta \rho_{33}$  также может быть как положительной, так и отрицательной. С ростом соотношения между частотами Раби можно наблюдать, что более отчетливо проявляются три экстремума. Два экстремума имеют характер максимума и один, центральный, имеет характер минимума. Примечательным является то, что максимум значения  $\Delta \rho_{33}$  достигается для ненулевых отстроек. Аналитическое выражение, определяющее данный экстремум, к сожалению, в простом виде получить не удастся, так как оно может быть получено из решения алгебраического уравнения для полинома 13-й степени и имеет сложный характер зависимости от величин  $\gamma'$ ,  $\Omega_1$ ,  $\Omega_2$ . Обнаруженные особенности также являются следствием нелинейного вклада от остаточного эффекта Доплера.

Отметим, что полученные результаты выполнены в модели, когда  $\Gamma_{12} = 0$ . С увеличением скорости перемешивания между основными состояниями сверхтонкой структуры эффект начинает ослабевать. Так, при значениях  $\Gamma_{12} = 250 \text{ c}^{-1}$  эффект снижается вдвое, при  $\Gamma_{12} = 10^4 \text{ c}^{-1}$  эффект полностью пропадает.

Как было показано выше, обнаруженные особенности в разностном сигнале КПН-резонанса имеют место как для отдельных скоростных групп атомов, так и для суммарного вклада от всех скоростных групп атомов.

Для того чтобы экспериментально наблюдать эффект от отдельных скоростных групп, можно предложить его исследовать, например, в атомных пучках. Для этого необходимо дважды измерить форму спектра стационарного КПН-резонанса по сигналам  $\rho_{33}(\Omega_1, \Omega_2)$  и  $\rho_{33}(\Omega_2, \Omega_1)$  и вычислить их разность. В газовых ячейках с антирелаксационным покрытием стенок (без буферного газа) также имеет место ненулевой разностный сигнал КПН-резонанса, поэтому такие ячейки также могут быть использованы для экспериментального наблюдения обнаруженных особенностей. Возможность экспериментального исследования имеет важное значение, поскольку позволит выявить вклад от нелинейного (кубического) слагаемого, обусловленного остаточным эффектом Доплера.

### 3.2. Сигнал инверсии

Рассмотрим влияние нелинейного вклада от остаточного эффекта Доплера, возникающего в движущихся атомах. Для этого определим инверсию, как  $f = \rho_{11}(\Omega_1, \Omega_2) - \rho_{22}(\Omega_1, \Omega_2)$ . При этом будем рассматривать случай, когда интенсивности лазерных полей одинаковые,  $\Omega_1 = \Omega_2 = \Omega_R$ . Проанализируем зависимость инверсии от проекции скорости атомов (рис. 6) в условиях двухфотонного резонанса, т.е. когда  $\delta_R = 0$ . Аналитический вид сигнала инверсии, усредненного по скоростным группам атомов, движущихся с противоположными скоростями:

$$\bar{f}(v) = \frac{f|_{v_z=v} + f|_{v_z=-v}}{2},$$

имеет вид

$$\begin{aligned} \bar{f}(v) = & \frac{4\Omega_R^4 G(v) + 2F(v)\Omega_R^2 \gamma'(\delta_R - v\Delta k) + \gamma'^2(\delta_R - v\Delta k)^2}{8\Omega_R^4 G(v) + 2\gamma'^2(\delta_R - v\Delta k)^2} + \\ & + \frac{4\Omega_R^4 G(v) - 2F(v)\Omega_R^2 \gamma'(\delta_R + v\Delta k) + \gamma'^2(\delta_R + v\Delta k)^2}{8\Omega_R^4 G(v) + 2\gamma'^2(\delta_R + v\Delta k)^2} - 1. \end{aligned} \tag{5}$$

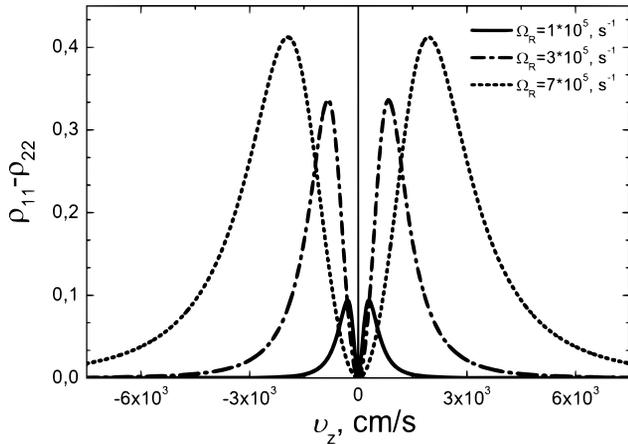


Рис. 6. Инверсия  $f$  в зависимости от проекции скорости  $v_z$  атомов для различных частот Раби. Параметры расчета следующие:  $T = 50^\circ \text{C}$ ,  $\Gamma_L = 0.25\gamma$ ,  $\Delta k = 1.44 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\Gamma_{12} = 0$ ,  $\gamma = 1.75 \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$ ,  $\Gamma_{12} = 0$

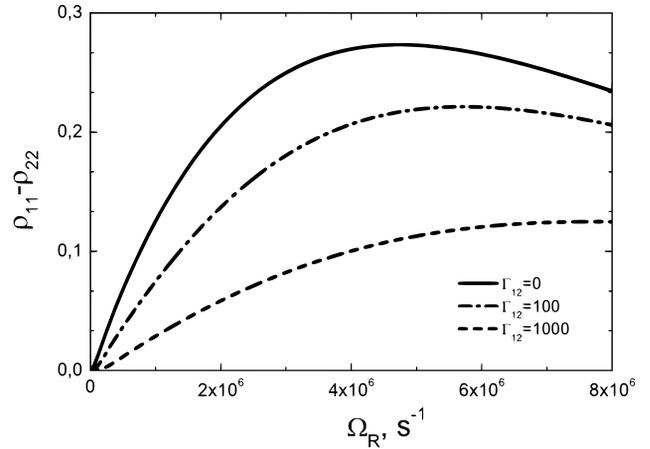


Рис. 8. Инверсия  $f$  в зависимости от частот Раби для различных  $\Gamma_{12}$ . Параметры расчета следующие:  $T = 50^\circ \text{C}$ ,  $\Gamma_L = 0.25\gamma$ ,  $\Delta k = 1.44 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\Gamma_{12} = 0$ ,  $\gamma = 1.75 \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$

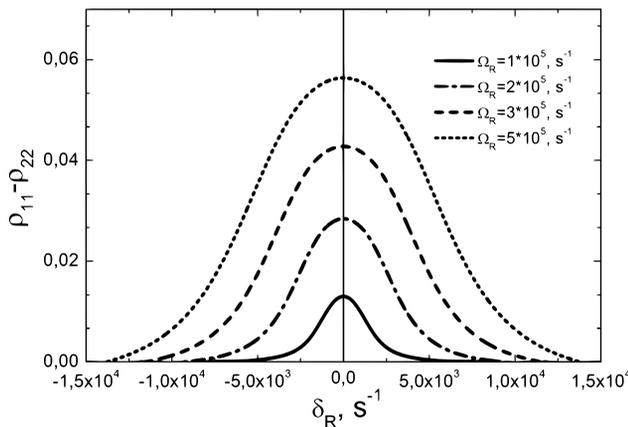


Рис. 7. Инверсия  $f$  в зависимости от двухфотонной отстройки для различных значений частот Раби. Параметры расчета следующие:  $T = 50^\circ \text{C}$ ,  $\Gamma_L = 0.25\gamma$ ,  $\Delta k = 1.44 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\Gamma_{12} = 0$ ,  $\gamma = 1.75 \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$

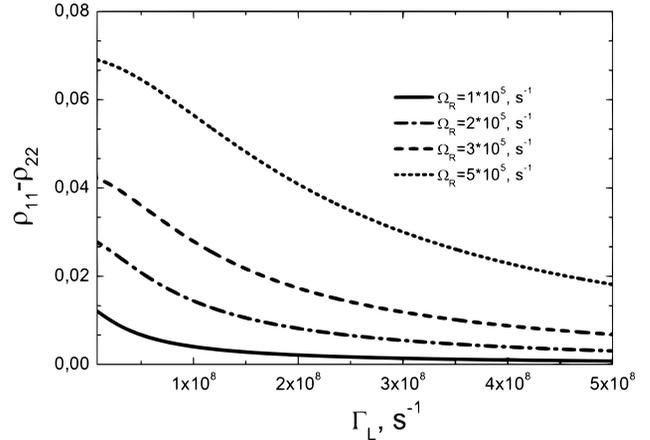


Рис. 9. Инверсия  $f$  в зависимости от частот ширины спектра лазера для различных значений частот Раби. Параметры расчета следующие:  $T = 50^\circ \text{C}$ ,  $\Gamma_L = 0.25\gamma$ ,  $\Delta k = 1.44 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\gamma = 1.75 \cdot 10^7 \text{ c}^{-1}$

Зависимость  $f$  от проекции скорости  $v_z$  атомов представлена на рис. 6. На рисунке можно видеть, что существует диапазон скоростей, в котором имеет место отличная от нуля инверсия. С ростом частоты Раби наблюдается увеличение значения  $f$ , а также расширение диапазона скоростей, в котором возникает инверсия между состояниями  $|1\rangle$  и  $|2\rangle$ . В предельном случае  $f \leq 0.5$ . Наблюдаемые особенности обусловлены проявлением остаточного эффекта Доплера. Наиболее сильно эффект проявляется для  $\Gamma_{12} = 0$ . С ростом релаксации основного состояния увеличивается перемешивание между подуровнями  $|1\rangle$  и  $|2\rangle$ , поэтому населенности этих подуровней при значениях  $\Gamma_{12}$ , сопоставимых со скоростью оптической накачки, становятся одинаковыми, что приводит к  $f = 0$ .

Проследим, какое будет иметь поведение инверсия для интегрального сигнала, определяемое следующим выражением:

$$\langle f \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} f(v_z) M(v_z) dv_z. \quad (6)$$

На рис. 7 представлены зависимости инверсии  $f$  от двухфотонной отстройки для различных значений частот Раби. Во-первых, можно отметить, что абсолютные значения инверсии составляют значительно меньшую величину для интегрального сигнала, чем для отдельных скоростных групп. Тем не менее данный эффект может достигать до нескольких десятков процентов. Во-вторых, видно, что данный эффект свойственен атомам, находящимся в КПП-

резонансе или вблизи него. С увеличением двухфотонной отстройки наличие инверсии, вызванной влиянием остаточного эффекта Доплера, уменьшается и в конечном итоге населенности между состояниями  $|1\rangle$  и  $|2\rangle$  выравниваются.

С ростом частот Раби значение  $f$  начинает возрастать (рис. 8). Это происходит до определенного момента, после которого  $f$  опять убывает. В случае, когда растет ширина спектра лазера, эффективная скорость оптической накачки, приходящейся на отдельный атом, уменьшается, что приводит к уменьшению инверсии. Это и демонстрирует рис. 9.

В качестве возможных областей применения обсуждаемых в статье эффектов могут выступать пучковые стандарты частоты, квантовые сенсоры, атомные градиометры [43, 44] и атомные гравиметры/акселерометры [45, 46].

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основе квантово-кинетического подхода для матрицы плотности получены аналитические выражения для разностного сигнала КПН-резонанса, соответствующего двум противоположным (по отношению к направлению распространения лазерного излучения) скоростным группам атомов. Проанализирован сигнал КПН-резонанса для атомов, соответствующих  $+v$  и  $-v$  скоростным группам, и показано, что имеет место нелинейный оптический эффект, который проявляется как различие населенностей  $\rho_{33}(\Omega_1, \Omega_2, v)$  и  $\rho_{33}(\Omega_2, \Omega_1, v)$  в определенных скоростных группах. Также проанализирована разность населенностей между основными состояниями сверхтонкой структуры и продемонстрировано, что в условиях КПН-резонанса при одинаковых частотах Раби может возникать инверсия населенностей. Величина инверсии определяется частотами Раби. Эти эффекты обусловлены только свободным движением атомов в газе. Показано, что разностный сигнал КПН-резонанса определяется соотношением частот Раби  $\Omega_{1,2}/\Omega_{2,1}$  и имеет немонотонную зависимость от соотношения частот Раби. Предсказанные эффекты имеют место как для отдельных скоростных групп атомов, так и для суммарного вклада от всех скоростных групп атомов. Наблюдаемые эффекты связываются с кубическим вкладом от остаточного эффекта Доплера.

Обнаруженные особенности имеют место только при свободном движении атомов в газе и не могут проявляться в ячейках с буферным газом. С математической точки зрения это обусловлено тем, что

в квантовых кинетических уравнениях для матрицы плотности учитывается слагаемое вида  $(v \cdot \nabla)$ , имеющее смысл гидродинамического потока, разностный вклад от которого для атомов, движущихся вдоль и против направления лазерного луча в сочетании с различным соотношением частот Раби, отличен от нуля. Проявление нелинейного вклада от остаточного эффекта Доплера носит фундаментальный характер и лежит в основе дальнейшего наблюдения целого ряда новых оптических эффектов в газе. Эти эффекты связаны с модификацией спектров поглощения при прохождении бихроматического лазерного излучения через газовую среду с щелочными атомами в условиях двухфотонного резонанса при наличии невырожденной сверхтонкой и зеемановской структуры возбужденного уровня, в средах с конечной оптической плотностью, в газовых ячейках с антирелаксационным стеночным покрытием.

В газовых ячейках, в которых нельзя сделать селекцию по скоростям, обнаруженные эффекты проявляются по-разному для различных скоростных групп. Это приведет к тому, что суммарный вклад отразится на сигнале КПН-резонанса. Данная задача является основой для дальнейшего развития данного направления исследований. Помимо фундаментального характера, полученные результаты могут иметь важность для прецизионной лазерной спектроскопии и при разработке квантовых стандартов частоты.

**Финансирование.** Исследование зависимостей сигнала КПН от суммарного вклада всех скоростных групп профинансировано Министерством науки и высшего образования РФ в рамках Программы стратегического академического лидерства «Приоритет-2030» (соглашение № 075-15-2024-201 от 6 февраля 2024 г.).

#### ЛИТЕРАТУРА

1. G. Alzetta et al., *Nuovo Cim.* В **36**, 5 (1976).
2. E. Arimondo and G. Orriols, *Lett. Nuovo Cim.* **17**, 333 (1976).
3. H. R. Gray, R. M. Whitley, and C. R. Stroud, Jr., *Opt. Lett.* **3**, 218 (1978).
4. Б. Д. Агапьев, М. Б. Горный, Б. Г. Матисов и др., *УФН* **163**, 1 (1993).
5. С. А. Зибров, В. Л. Величанский, А. С. Зибров и др., *Письма в ЖЭТФ* **82**, 534 (2005).

6. J. Kitching, Appl. Phys. Rev. **5**, 031302 (2018).
7. S. Kobtsev, S. Donchenko, S. Khripunov, D. Radnatarov, I. Blinov, and V. Palchikov, Opt. Laser Technol. **119**, 105634 (2019).
8. М. Н. Скворцов, С. М. Игнатович, В. И. Вишняков и др., Квант. электр. **50**, 576 (2020).
9. G. D. Martinez, C. Li, A. Staron et al., Nature Commun. **14**, 3501 (2023).
10. A. Akulshin, A. Celikov, and V. Velichansky, Opt. Commun. **84**, 139 (1991).
11. R. Mhaskar, S. Knappe, and J. Kitching, Appl. Phys. Lett. **101**, 241105 (2012).
12. V. Andryushkov, D. Radnatarov, and S. Kobtsev, Appl. Opt. **61**, 3604 (2022).
13. M. D. Lukin, Rev. Mod. Phys. **75**, 457 (2003).
14. M. Fleischhauer, A. Imamoglu, and J. P. Marangos, Rev. Mod. Phys. **77**, 633 (2005).
15. А. К. Вершовский, В. С. Жолнеров, Ю. В. Рождественский, О. П. Харчев, Патент 2490836 С1 от 20.08.2013.
16. И. М. Соколов, Квант. электр. **45**, 10 (2015).
17. S. N. Bagayev, V. P. Chebotayev, A. K. Dmitriyev, A. E. Om, Yu. V. Nekrasov, and B. N. Skvortsov, Appl. Phys. B **52**, 63 (1991).
18. Ch. Chardonnet, F. Guernet, G. Charton, and Ch. J. Borde, Appl. Phys. B **59**, 333 (1994).
19. A. V. Taichenachev, A. M. Tumaikin, and V. I. Yudin, JETP Lett. **72**, 119 (2000).
20. H. Lee, Yu. Rostovtsev, C. J. Bednar, and A. Javan, Appl. Phys. B **76**, 33 (2003).
21. M. S. Feld and A. Javan, Phys. Rev. **2**, 177 (1969).
22. C. Y. Ye and A. S. Zibrov, Phys. Rev. A **65**, 023806 (2002).
23. D. Brazhnikov et al., Phys. Rev. A **99**, 062508 (2019).
24. К. А. Баранцев, А. С. Курапцев, А. Н. Литвинов, ЖЭТФ **160**, 611 (2021).
25. А. Н. Литвинов, И. М. Соколов, Письма в ЖЭТФ **113**, 791 (2021).
26. К. А. Баранцев, Г. В. Волошин, А. С. Курапцев, А. Н. Литвинов, И. М. Соколов, ЖЭТФ **163**, 162 (2023).
27. V. I. Yudin, A. V. Taichenachev, M. Yu. Basalaev, O. N. Prudnikov, and S. N. Bagayev, J. Opt. Soc. Amer. B **39**, 1979 (2022).
28. В. И. Юдин, А. В. Тайченачев, М. Ю. Басалаев, О. Н. Прудников, В. Г. Пальчиков, Т. Занон-Виллетт, С. Н. Багаев, Письма в ЖЭТФ **117**, 406 (2023).
29. С. Г. Раутиан, Г. И. Смирнов, А. М. Шалагин, *Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул*, Наука, Новосибирск (1979).
30. D. V. Kupriyanov, I. M. Sokolov, N. V. Larionov, P. Kulatunga, C. I. Sukenik, S. Balik, and M. D. Havey, Phys. Rev. A **69**, 033801 (2004).
31. V. M. Datsyuk, I. M. Sokolov, D. V. Kupriyanov, and M. D. Havey, Phys. Rev. A **74**, 043812 (2006).
32. V. M. Datsyuk, I. M. Sokolov, D. V. Kupriyanov, and M. D. Havey, Phys. Rev. A **77**, 033823 (2008).
33. A. S. Kuraptsev, I. M. Sokolov, and M. D. Havey, Phys. Rev. A **96**, 023830 (2017).
34. Ya. A. Fofanov, A. S. Kuraptsev, I. M. Sokolov, and M. D. Havey, Phys. Rev. A **84**, 053811 (2011).
35. A. S. Kuraptsev and I. M. Sokolov, Phys. Rev. A **90**, 012511 (2014).
36. И. М. Соколов, Д. В. Куприянов, М. Д. Хэви, ЖЭТФ **139**, 288 (2011).
37. Y. A. Fofanov, I. M. Sokolov, R. Kaiser, and W. Guerin, Phys. Rev. A **104**, 023705 (2021).
38. R. H. Dicke, Phys. Rev. **89**, 472 (1953).
39. G. Kazakov, B. Matisov, A. Litvinov, and I. Mazets, J. Phys. B: Atom. Mol. Opt. Phys. **40**, 3851 (2007).
40. E. Taskova and E. Alipieva, J. Phys.: Conf. Series **1859**, 012025 (2021).
41. Г. В. Волошин, Опт. и спектр. **131**, 49 (2023).
42. К. А. Баранцев, Е. Н. Попов, А. Н. Литвинов, ЖЭТФ **148**, 869 (2015).
43. B. Stray, A. Lamb, A. Kaushik et al., Nature **602**, 590 (2022).
44. А. Е. Афанасьев, П. И. Скакуненко, В. И. Балыкин, Письма в ЖЭТФ **119**, 89 (2024).
45. D. Li, W. He, S. Shi, B. Wu, Y. Xiao, Q. Lin, and L. Li, Sensors **23**, 5089 (2023).
46. G. Ge, X. Chen, J. Li, D. Zhang, M. He, W. Wang, Y. Zhou, J. Zhong, B. Tang, J. Fang, J. Wang, and M. Zhan, Sensors **23**, 6115 (2023).