УЧЕНЫЕ ЗАПИСКИ КАЗАНСКОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО УНИВЕРСИТЕТА
Том 151, кн. 1 Физико-математические науки *2009*

УДК 535.182+535.2+535.34

ДВУХФОТОННОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ ПРИ РАСПРОСТРАНЕНИИ СЛАБЫХ ИМПУЛЬСОВ СВЕТА В ПРОТЯЖЕННЫХ ДИСПЕРГИРУЮЩИХ СРЕДАХ

В.О. Сербиненко, А.А. Калачёв

Аннотация

Рассматривается прохождение коротких световых импульсов через трёхуровневую резонансную среду в условиях, когда имеется точный резонанс на двухфотонном переходе и отсутствует резонанс на однофотонных переходах. Сделан расчет вероятности двухфотонного поглощения с учетом дисперсии групповых скоростей для случая гауссовой формы импульсов. Проанализирована зависимость вероятности двухфотонного поглощения от расстояния, пройденного световым импульсом, и от величины расстройки между частотой однофотонных переходов и несущей частотой импульса.

Ключевые слова: распространение света, двухфотонное поглощение, дисперсия.

Введение

Явление двухфотонного поглощения было предсказано Марией Гепперт-Майер в 1931 г. [1], а первый эксперимент был поставлен спустя 30 лет, уже после создания лазеров [2]. С тех пор это явление интенсивно исследуется как теоретически, так и экспериментально; оно служит важным инструментом нелинейной лазерной спектроскопии [3–5]. Нелинейные эффекты типа двухфотонного поглощения традиционно считаются пренебрежимо малыми при энергиях возбуждения на уровне одиночных фотонов. Однако вероятность двухфотонного поглощения может быть значительной при взаимодействии света с протяжённой средой типа оптического волокна, что можно использовать в квантовой информатике для повышения эффективности оптических квантовых вычислений [6] и измерений в базисе Белла [7], а также для кодового разделения каналов в системах оптической связи, использующих бифотоны для передачи информации [8, 9]. При этом увеличение длины взаимодействия сопровождается дисперсионным расплыванием двухфотонных волновых пакетов [10], что существенным образом влияет на вероятность двухфотонного поглощения. Цель данной работы как раз и заключается в том, чтобы проанализировать влияние дисперсионного расплывания слабого светового импульса на вероятность двухфотонного поглощения.

1. Основные результаты

Рассмотрим взаимодействие короткого возбуждающего лазерного импульса с трёхуровневым атомом. Предположим, что имеется лишь двухфотонный резонанс на переходе между нижним и верхним атомными уровнями (рис. 1). Другими словами, величина расстройки между несущей частотой импульса и частотами однофотонных переходов существенно больше как спектральной ширины последних, так и спектральной ширины импульса. В начальный момент времени $t = -\infty$

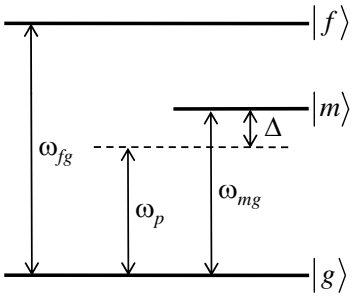

Рис. 1. Схема рабочих уровней и переходов: $|g\rangle$, $|f\rangle$, $|m\rangle$ – основное, возбуждённое и промежуточное атомные состояния; $\omega_p = \omega_{fg}/2$ – несущая частота лазерного импульса; $\Delta = \omega_p - \omega_{mg}$ – величина расстройки

атом находится в основном состоянии $|g\rangle$. Амплитуда вероятности двухфотонного перехода в возбуждённое состояние $|f\rangle$ вычисляется во втором порядке теории возмущений по формуле

$$a_f(t) = -\frac{\mu_{fm}\mu_{mg}}{\hbar^2} \int\limits_{-\infty}^{t} \int\limits_{-\infty}^{t'} E(t')E(t'')\, e^{i\omega_{fm}t' + i\omega_{mg}t''}\, dt'\, dt'', \tag{1}$$

где μ_{ij} – матричный элемент оператора дипольного момента на переходе между i-м и j-м атомными состояниями, ω_{ij} – частота соответствующего перехода, $E(t)$ – напряжённость электрического поля возбуждающего импульса. Длительность импульса предполагается значительно короче времён жизни возбуждённых атомных состояний. Используя фурье-преобразование

$$E(t) = (2\pi)^{-1/2} \int\limits_{-\infty}^{\infty} E(\omega) \exp(-i\omega t)\, d\omega,$$

переходя к пределу $t \to \infty$ и учитывая, что $\omega_{fg} = \omega_{fm} + \omega_{mg}$, получаем

$$a_f \equiv a_f(t \to \infty) = -\frac{\mu_{fm}\mu_{mg}}{i\hbar^2} \int\limits_{-\infty}^{\infty} \frac{E(\omega)E(\omega_{fg} - \omega)}{\omega_{mg} - \omega}\, d\omega. \tag{2}$$

Поскольку расстройка $\omega_{mg} - \omega$ предполагается существенно больше спектральной ширины импульса, приходим окончательно к следующему выражению:

$$a_f = \frac{1}{i\hbar^2} \frac{\mu_{fm}\mu_{mg}}{\Delta} \int\limits_{-\infty}^{\infty} E(\omega)E(\omega_{fg} - \omega)\, d\omega, \tag{3}$$

где $\Delta = \omega_p - \omega_{mg}$ – частотная расстройка между несущей частотой лазерного импульса $\omega_p = \omega_{fg}/2$ и частотой однофотонного перехода ω_{mg}.

Пусть теперь лазерный импульс распространяется вдоль оси z в диспергирующей среде, занимающей полупространство $z \geq 0$. С учётом дисперсии амплитуда вероятности двухфотонного перехода при взаимодействии атома с импульсом, прошедшим в среде расстояние z, принимает следующий вид:

$$a_f(z) = \frac{1}{i\hbar^2} \frac{\mu_{fm}\mu_{mg}}{\Delta} \int\limits_{-\infty}^{\infty} E(\omega)E(\omega_{fg} - \omega)\, e^{ik(\omega)z + ik(\omega_{fg} - \omega)z} d\omega, \tag{4}$$

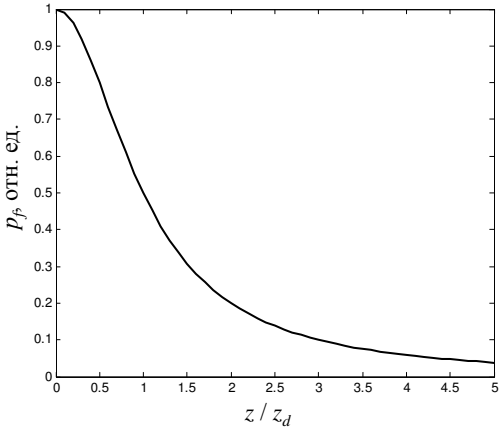

Рис. 2. Зависимость вероятности двухфотонного поглощения p_f от расстояния z, пройденного световым импульсом в среде с учётом дисперсии групповых скоростей

где $k(\omega) = n(\omega)\omega/c$, $n(\omega)$ – показатель преломления, c – скорость света в вакууме. Предположим, что лазерный импульс на входе в среду ($z = 0$) имеет гауссову форму

$$E(t) = E_0 \exp(-t^2/2\tau^2) \exp(-i\omega_p t), \tag{5}$$

а зависимость волнового вектора от частоты имеет стандартный (для больших расстроек) вид

$$k(\omega) = k(\omega_p) + \alpha(\omega - \omega_p) + \beta(\omega - \omega_p)^2. \tag{6}$$

Здесь $\alpha = \partial k/\partial\omega|_{\omega_p}$ – обратная групповая скорость импульса, а $\beta = \dfrac{1}{2}\partial^2 k/\partial\omega^2|_{\omega_p}$ – параметр, определяющий уширение импульса за счёт дисперсии групповых скоростей. Тогда из формулы (4) для вероятности двухфотонного перехода получим:

$$p_f(z) = |a_f(z)|^2 = \frac{\pi E_0^4 \tau_0^2}{\hbar^4} \frac{|\mu_{fm}\mu_{mg}|^2}{\Delta^2} \frac{1}{1 + (z/z_d)^2}, \tag{7}$$

где $z_d = \tau_0^2/|2\beta|$ – дисперсионная длина (при $z = z_d$ гауссов импульс уширяется в $\sqrt{2}$ раз). Пусть лазерный импульс имеет энергию W, а площадь сечения лазерного пучка равна S. Тогда $E_0 = W^{1/2}(2\epsilon_0 c S \tau_0 \sqrt{\pi})^{-1/2}$ и формула (7) принимает вид

$$p_f(z) = \left(\frac{W}{2\epsilon_0 c S}\right)^2 \frac{|\mu_{fm}\mu_{mg}|^2}{\hbar^4 \Delta^2} \frac{1}{1 + (z/z_d)^2}. \tag{8}$$

Таким образом, при заданной энергии импульса вероятность двухфотонного перехода не зависит от длительности импульса. Что касается зависимости вероятности $p_f(z)$ от расстояния z, пройденного световым импульсом, то она представлена на рис. 2. Уменьшение с расстоянием вероятности двухфотонного перехода связано с тем, что из-за дисперсии групповых скоростей происходит расхождение во времени сопряженных частотных компонент импульса $E(\omega)$ и $E(\omega_{fg} - \omega)$.

Теперь предположим, что дисперсия $k(\omega)$ обусловлена наличием в среде таких же трёхуровневых атомов, равномерно распределённых с концентрацией n. Тогда (см., например, [11]):

$$k(\omega) \approx \frac{\omega}{c}\left(1 + \frac{\Omega^2}{\omega_{mg}^2 - \omega^2}\right), \tag{9}$$

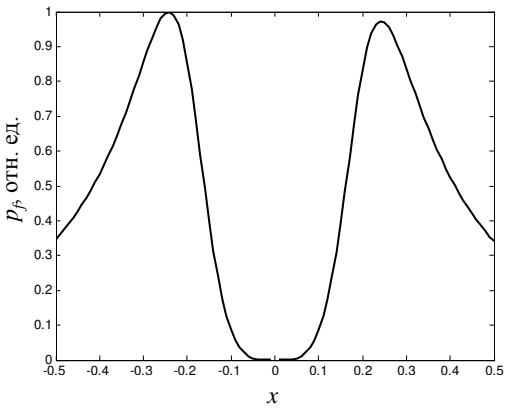

Рис. 3. Зависимость вероятности двухфотонного поглощения p_f от расстройки $x = \Delta/\omega_{fg}$ при $z/z' = 10^{-2}$

где $\Omega^2 = n|\mu_{mg}|^2\omega_{mg}/\varepsilon_0\hbar$. В результате для коэффициента β получаем:

$$2\beta = \frac{\Omega^2\omega_{fg}(3\Delta^2 - 3\Delta\omega_{fg} + \omega_{fg}^2)}{c\Delta^3(\Delta - \omega_{fg})^3}. \tag{10}$$

Подставляя полученное выражение (10) в формулу (8), находим зависимость вероятности двухфотонного поглощения от расстройки $x = \Delta/\omega_{fg}$:

$$p_f(x) \propto \left[1 + \left(\frac{z}{z'}\frac{3x^2 - 3x + 1}{x^3(x-1)^3}\right)^2\right]^{-1}\frac{1}{x^2}, \tag{11}$$

где $z' = \tau_0^2 c\omega_{fg}^3/\Omega^2$. Типичная зависимость $p_f(x)$ при значениях $z/z' \ll 1$ показана на рис. 3. Анализ формулы (11)показывает, что имеется два характерных случая. Если $z \ll z_d$, то, очевидно, $p_f(x)$ становится обратно пропорциональной x^2, то есть чем меньше расстройка между частотой возбуждающего импульса и частотой однофотонного перехода, тем эффективнее процесс двухфотонного поглощения. С другой стороны, если $z \gg z_d$, то становится существенной зависимость дисперсии групповых скоростей от частоты, так что, наоборот, $p_f(x) \propto x^4$ при $x \ll 1$. Здесь следует отметить, что при $x \ll 1$ дисперсионная длина $z_d = \tau_0^2/|2\beta| \propto x^6$. Таким образом, могут существовать оптимальные значения расстройки, при которых достигается максимум вероятности $p_f(x)$, что и иллюстрирует рис. 3.

Формула (8) описывает вероятность двухфотонного поглощения одним трёхуровневым атомом, расположенным в конце слоя толщиной z. Если среда содержит множество одинаковых атомов, равномерно распределённых в среде с концентрацией n, то полная вероятность двухфотонного поглощения вычисляется путём суммирования вкладов от всех атомов. Разобъём среду на слои толщиной dz. Вероятность пропускания каждого слоя равна $1 - p_f(z)nS\,dz$. Тогда вероятность пропускания среды толщиной z получается равной

$$1 - P(z) = 1 - \exp\left(-\int_0^z p_f(z)nS\,dz\right), \tag{12}$$

где $P(z)$ – полная вероятность поглощения. Подставляя в (12) формулу (7) и вычисляя интеграл, приходим к следующему выражению:

$$P(z) = 1 - \exp\left(-P_d \mathrm{arctg}\,(z/z_d)\right), \tag{13}$$

где величина

$$P_d = \left(\frac{W}{2\epsilon_0 cS}\right)^2 \frac{|\mu_{fm}\mu_{mg}|^2 z_d n S}{\hbar^2 \Delta^2} \tag{14}$$

имеет смысл оптической толщины среды длиной z_d в режиме двухфотонного поглощения без учёта дисперсии.

Сравним полученную зависимость (13) с обычной экспоненциальной, используя асимптотики

$$\operatorname{arctg}(z) = \begin{cases} z + \ldots, & z \ll 1, \\ \pi/2 - 1/z + \ldots, & z \gg 1. \end{cases} \tag{15}$$

Если расстояние z, пройденное светом, существенно меньше дисперсионной длины z_d, то формула (13) соответствует обычному закону поглощения Бугера–Ламберта–Бера при однофотонном резонансе. При этом полная вероятность двухфотонного поглощения $P(z)$ увеличивается с расстоянием и может стать близкой к единице, только если оптическая толщина P_d много больше единицы. Наоборот, если $z \gg z_d$, то вероятность двухфотонного поглощения перестаёт зависеть от расстояния. При этом полная вероятность поглощения $P(z)$ может приблизиться к единице по мере увеличения длины взаимодействия, только если P_d также много больше единицы. В противном случае, с увеличением расстояния полная вероятность поглощения достигает максимального значения, которое тем меньше, чем меньше оптическая толщина P_d. Поскольку $\operatorname{arctg}(z) \leq \pi/2$, для каждого требуемого значения полной вероятности двухфотонного поглощения $P(z \to \infty)$ можно найти минимально допустимое значение оптической толщины P_d.

Заключение

В настоящей работе теоретически исследовалось прохождение коротких световых импульсов через трёхуровневую резонансную среду в условиях точного резонанса на двухфотонном переходе и отсутствия резонанса на однофотонных переходах. Сделан расчёт вероятности двухфотонного поглощения с учётом дисперсии групповых скоростей для случая гауссовой формы импульсов. Показано, что вероятность двухфотонного поглощения существенным образом зависит от дисперсии групповых скоростей, величина которой, в свою очередь, зависит от частотной расстройки – разности между несущей частотой импульса и частотой однофотонного перехода. В результате установлено, что существуют оптимальные значения частотной расстройки, при которых достигается максимум вероятности двухфотонного поглощения.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 09-02-00206-а), программы Президиума РАН «Квантовая макрофизика» и гранта президента РФ ВНШ РФ (№ НШ 2965.2008.2).

Summary

V.O. Serbinenko, A.A. Kalachev. Two-Photon Absorption under Propagation of Weak Pulses of Light in Dispersive Media.

The propagation of short pulses of light in a three-level resonant medium under conditions of two-photon resonance and in the absence of one-photon resonance is considered. The probability of two-photon absorption is calculated for the case of a gaussian pulse accounting for group velocity dispersion. The dependence of the probability on the distance of propagation and on the frequency detuning between the pulse and one-photon transition is analyzed.

Key words: propagation of light, two-photon absorption, dispersion.

Литература

1. *Göppert-Mayer M.* Über elementarakte mit zwei quantensprüngen // Ann. Phys. (Leipzig). – 1931. – V. 9. – P. 273–283.

2. *Kaiser W.C., Garrett G.B.* Two-photon excitation in CaF_2:Eu^{2+} // Phys. Rev. Lett. – 1961. – V. 7. – P. 229– 231.

3. Нелинейная спектроскопия / Под ред. Н. Бломбергена; пер. с англ. – М.: Мир, 1979. – 586 с.

4. *Демтрёдер В.* Лазерная спектроскопия. – М.: Наука, 1985. – 608 с.

5. *Шен И.Р.* Принципы нелинейной оптики / Пер. с англ. – М.: Наука, 1989. – 560 с.

6. *Franson J.D., Jacobs B.C., Pittman T.B.* Quantum computing using single photons and the Zeno effect // Phys. Rev. A. – 2004. – V. 70. – P. 062302.

7. *Kim Y.H., Kulik S.P., Shih Y.* Quantum teleportation of a polarization state with a complete Bell state measurement // Phys. Rev. Lett. – 2001. – V. 86. – P. 1370–1373.

8. *Péer A., Dayan B., Silberberg Y., Friesem A.A.* Optical code-division multiple access using broad-band parametrically generated light // J. Lightwave Technol. – 2004. – V. 22. – P. 1463–1471.

9. *Dayan B., Péer A., Friesem A.A., Silberberg Y.* Nonlinear Interactions with an Ultrahigh Flux of Broadband Entangled Photons // Phys. Rev. Lett. – 2005. – V. 94. – P. 043602.

10. *Brida G., Chekhova M.V., Genovese M., Gramegna M., Krivitsky L.A.* Dispersion Spreading of Biphotons in Optical Fibers and Two-Photon Interference // Phys. Rev. Lett. – 2006. – V. 96. – P. 143601.

11. *Лоудон Р.* Квантовая теория света / Пер. с англ. – М.: Мир, 1976. – 488 с.

Поступила в редакцию
03.02.09

Сербиненко Валерия Олеговна – студент кафедры оптики и нанофотоники Казанского государственного университета.

E-mail: *valeria.srb@mail.ru*

Калачёв Алексей Алексеевич – кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник лаборатории нелинейной оптики Казанского физико-технического института имени Е.К. Завойского КазНЦ РАН.

E-mail: *kalachev@kfti.knc.ru*