

# Определение отношения E2/M1-амплитуд в атомах из поляризационной зависимости двухчастотного смешивания

В.Д.Овсянников, Н.В.Першин, Е.В.Чаплыгин

*Показано, что поляризационная зависимость процесса смешивания двух частот свободными атомами может быть использована для определения соотношения E2/M1-вкладов в амплитуду дипольно запрещенного радиационного перехода. Приведены расчеты эффекта в атомах индия и таллия, для которых эта величина играет важную роль в описании эффектов несохранения четности в оптических спектрах атомов.*

**Ключевые слова:** атом, лазерное излучение, смешивание частот, E2/M1-переход, поляризация.

## 1. Введение

Точные данные о соотношении E2/M1-амплитуд (электроквадрупольной к магнитодипольной) в дипольно запрещенных радиационных переходах атомов играют важную роль в прецизионных измерениях частотных стандартов и эффектов несохранения четности для соответствующих линий. Эти данные могут быть получены на основе характеристик резонансного многофотонного процесса с участием соответствующего перехода. Простейшим среди нелинейных является процесс трехфотонного рассеяния, представляющий собой смешивание частот двух излучений нормальными атомами.

Максимальной эффективности смешивания можно добиться в условиях двойного резонанса, который наиболее эффективен для атомов, свободных от возмущающего уровня воздействия внешних полей. Последние достижения в области охлаждения и захвата атомов в ловушках предоставляют новые возможности также и для изучения некогерентного рассеяния волны суммарной или разностной частоты в направлении распространения падающих волн, которое принципиально возможно на атомах с полным моментом  $J_0 \neq 0$  [1]. Такое продольное рассеяние волны со смешанной частотой несколькими охлажденными атомами в ловушке под действием двухчастотного дважды резонансного излучения может быть наблюдаемо, что даст существенную информацию о внутренней структуре атомов и о их взаимодействии с внешними полями. Для этого частоты и поляризации падающих излучений должны быть строго согласованы с частотами и матричными элементами электромагнитных переходов нормальных атомов.

В настоящей работе рассматривается трехволновой процесс смешивания частот в газообразной среде из свободных атомов индия или таллия в нормальном состоянии в поле двух монохроматических падающих волн, индуцирующих рассеяние фотонов суммарной или раз-

ностной частоты. Одна из волн резонансна с E2/M1-переходом из основного в первое возбужденное состояние, две другие волны резонансны с электродипольными переходами из этих состояний в третье состояние, как показано на рис. 1.

## 2. Сечение когерентного смешивания частот двух резонансных волн

Рассмотрим процесс трехволнового смешивания в газе из свободных атомов в основном состоянии  $|nL_0J_0\rangle$  в поле двух падающих и одного генерируемого излучений с частотами и единичными векторами поляризации  $\{\omega_1, e_1\}$ ,  $\{\omega_2, e_2\}$  и  $\{\omega', e'\}$ . Первое возбужденное состояние  $|nL_0J_1\rangle$  является подуровнем тонкой структуры основного состояния с  $J_1 \geq 2 - J_0$ ,  $|J_1 - J_0| \leq 1$ , поэтому между ними разрешены как E2-, так и M1-переходы при полном запрете дипольного E1-перехода. Электродипольные переходы разрешены между вторым возбужденным состоянием  $|n_2L_2J_2\rangle$  и обоими подуровнями основного дублета (см. рис. 1).

В этой системе возможно преобразование как с понижением генерируемой частоты  $\omega_2 = \omega' - \omega_1$  или  $\omega_1 = \omega' - \omega_2$  (рис. 1, а), так и с повышением частоты  $\omega' = \omega_1 +$

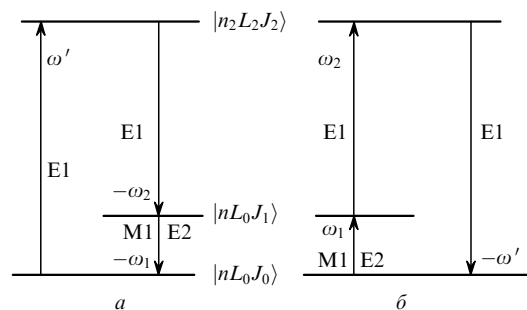


Рис. 1. Энергетическая диаграмма амплитуды дважды резонансного смешивания двух частот свободным атомом, находящимся в основном состоянии  $|nL_0J_0\rangle$ , для преобразования двух падающих излучений с частотами  $\omega'$  и  $\omega_2$  ( $\omega_1$ ), резонансных с дипольными переходами в возбужденное состояние  $|n_2L_2J_2\rangle$  из основного  $|nL_0J_0\rangle$  и подуровня его тонкой структуры  $|nL_0J_1\rangle$ , в излучение частоты  $\omega_1 = \omega' - \omega_2$  ( $\omega_2 = \omega' - \omega_1$ ) (а) и для преобразования двух падающих излучений с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$  в излучение  $\omega' = \omega_1 + \omega_2$  (б).

В.Д.Овсянников, Н.В.Першин, Е.В.Чаплыгин. Воронежский государственный университет, Россия, 394006 Воронеж, Университетская пл., 1; e-mail: vit@ovd.vsu.ru

Поступила в редакцию 9 января 2004 г.

$\omega_2$  (рис.1,б). Повышение частоты при условии  $\omega' = E_{n_2L_2J_2} - E_{nL_0J_0} - \varepsilon'$ ,  $\omega_1 = E_{nL_0J_1} - E_{nL_0J_0} - \varepsilon$  и  $\omega_2 \approx E_{n_2L_2J_2} - E_{nL_0J_1}$  ( $|\varepsilon| \ll \omega_1$ ,  $|\varepsilon'| \ll \omega'$ ) представляет практический интерес для генерации когерентного излучения УФ диапазона с помощью длинноволновых лазеров ( $n = 6$ ,  $n_2 = 7$  и длина генерируемой волны  $\lambda' = 377.7$  нм в таллии;  $n = 5$ ,  $n_2 = 6$  и  $\lambda' = 410.3$  нм в индии). Однако генерируемая волна суммарной частоты дипольно резонансна и может сильно поглощаться атомарной средой. Поэтому генерация волны ИК диапазона с частотой  $\omega_1 = \omega' - \omega_2 = E_{nL_0J_1} - E_{nL_0J_0} - \varepsilon$  (см. рис.1,а) может оказаться более эффективной и полезной в спектроскопических приложениях. Здесь обе падающие волны дипольно резонансны, тогда как генерируемая волна разностной частоты нерезонансна в дипольном приближении, и ее поглощение в среде практически отсутствует.

Общие формулы для амплитуд рассеяния фотонов суммарной и разностной частоты идентичны с точностью до замены знака у частоты и единичного вектора поляризации  $\{\omega, e\}$  у поглощаемого фотона на  $\{-\omega, e^*\}$  для излучаемого. Тем не менее, структуры поляризационной зависимости процессов, представленных на рис. 1,а и б, могут существенно различаться, поскольку поглощение фотонов строго фиксированной, задаваемой лазером поляризации отличается от излучения, например потому, что поляризация хотя бы одного из излучаемых фотонов не фиксирована. Поэтому мы рассмотрим как сложение, так и вычитание частот. В данном разделе ограничимся рассмотрением только сложения частот (рис.1,б).

Смешивание частот характеризуется трехфотонной амплитудой, в которой электроквадрупольный и магнитодипольный вклады могут быть отделены друг от друга:

$$U = U^{M1} + U^{E2}. \tag{1}$$

Здесь  $U^{M1}$  соответствует магнитодипольному взаимодействию атома с полем первой волны, описываемому гамильтонианом

$$\hat{V}_m = \frac{\alpha F_1}{4} ((\hat{J} + \hat{S})[\mathbf{n}_1, \mathbf{e}_1]), \tag{2}$$

где  $\hat{J}$  и  $\hat{S}$  – операторы полного момента и спина атома;  $\alpha = 1/137$  – постоянная тонкой структуры;  $U^{E2}$  соответствует электроквадрупольному взаимодействию, определяемому гамильтонианом

$$\hat{V}_q = i \frac{\alpha \omega_1 F_1}{2\sqrt{6}} (C_2(\theta, \varphi) \{\mathbf{n}_1 \otimes \mathbf{e}_1\}_2) r^2. \tag{3}$$

Здесь  $F_1$ ,  $\omega_1$ ,  $\mathbf{e}_1$ ,  $\mathbf{n}_1$  – амплитуда, частота, единичный вектор поляризации и единичный волновой вектор первой волны;  $C_l(\theta, \varphi) = [4\pi/(2l+1)]^{1/2} Y_l(\theta, \varphi)$  – модифицированная сферическая функция;  $\{\mathbf{n}_1 \otimes \mathbf{e}_1\}_2$  – неприводимое тензорное произведение второго ранга, составленное из двух векторов [2].

Взаимодействие со второй падающей волной  $F_2 = F_2 e_2$  и с генерируемой волной  $F' = F' e'$  предполагается электродипольным, описываемым гамильтонианом

$$\hat{V}_d = \frac{F}{2} (e r). \tag{4}$$

В одноэлектронном приближении электроквадрупольное (3) и дипольное (4) взаимодействия определяются

радиусом-вектором валентного электрона и его сферическими координатами  $\mathbf{r} = \{r, \theta, \varphi\}$ .

После интегрирования по угловым переменным амплитуды (1) можно представить в следующем виде:

$$U^{M1} = \frac{A}{2\varepsilon\varepsilon'} \sum_{p\lambda} C_{J_0M_0p\lambda}^{J_0M'_0} \sum_{p_1} a_{p_1p}^m \Phi_{p_1p\lambda}^m, \tag{5}$$

$$U^{E2} = \frac{i\omega_1 R A}{\sqrt{6\varepsilon\varepsilon'}} \sum_{p\lambda} C_{J_0M_0p\lambda}^{J_0M'_0} \sum_{p_1} a_{p_1p}^q \Phi_{p_1p\lambda}^q, \tag{6}$$

где  $A = \alpha F_1 F_2 F' \langle nL_0J_1 | r | n_2L_2J_2 \rangle \langle n_2L_2J_2 | r | nL_0J_0 \rangle / 8$  – зависящий от амплитуд полей  $F_1$ ,  $F_2$ ,  $F'$  фактор, который включает также и радиальные части матричных элементов электродипольных переходов (мы предполагаем, что интеграл перекрытия радиальных волновых функций, возникающий в матричном элементе М1-взаимодействия, равен единице,  $\langle nP_{3/2} | nP_{1/2} \rangle = 1$ , поскольку расчеты в приближении модельного потенциала [3] дают  $\langle 6P_{3/2} | 6P_{1/2} \rangle = 0.97$  для Тl,  $\langle 5P_{3/2} | 5P_{1/2} \rangle = 0.998$  для In);  $R = \langle nL_0J_0 | r^2 | nL_0J_1 \rangle$  – радиальная часть матричного элемента электроквадрупольного перехода; величины

$$\varepsilon = E_{nL_0J_1} - E_{nL_0J_0} - \omega_1 = \Delta - i\Gamma/2,$$

$$\varepsilon' = E_{n_2L_2J_2} - E_{nL_0J_0} - \omega' = \Delta' - i\Gamma'/2,$$

представляют собой расстройки резонансов  $\Delta$ ,  $\Delta'$  с мнимыми частями, определяемыми шириной возбужденных уровней,  $\Gamma$  и  $\Gamma'$ . Коэффициенты Клебша – Гордана  $C_{J_0M_0p\lambda}^{J_0M'_0}$  определяют зависимость амплитуды от состояния поляризации атома (от магнитного квантового числа  $M_0$ ).

Инвариантные атомные множители можно выразить через стандартные коэффициенты алгебры углового момента ( $6j$ -символы) [2]:

$$a_{p_1p}^m = \frac{(-1)^{J_1 - J_0 + 1}}{(2J_0 + 1)^{1/2}} \left\{ \begin{matrix} 1 & 1 & p_1 \\ J_0 & J_1 & J_2 \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} 1 & p_1 & p \\ J_0 & J_0 & J_1 \end{matrix} \right\} Q_{L_0J_0J_1, L_2J_2}^m, \tag{7}$$

$$a_{p_1p}^q = \frac{(-1)^{J_1 - J_0}}{(2J_0 + 1)^{1/2}} \left\{ \begin{matrix} 1 & 1 & p_1 \\ J_0 & J_1 & J_2 \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} 2 & p_1 & p \\ J_0 & J_0 & J_1 \end{matrix} \right\} Q_{L_0J_0J_1, L_2J_2}^q, \tag{8}$$

где

$$Q_{L_0J_0J_1, L_2J_2}^m = \langle L_0J_0 || \hat{J} + \hat{S} || L_0J_1 \rangle \langle L_0J_1 || C_1 || L_2J_2 \rangle \times \langle L_2J_2 || C_1 || L_0J_0 \rangle$$

и

$$Q_{L_0J_0J_1, L_2J_2}^q = \langle L_0J_0 || C_2 || L_0J_1 \rangle \langle L_0J_1 || C_1 || L_2J_2 \rangle \times \langle L_2J_2 || C_1 || L_0J_0 \rangle$$

являются произведениями приведенных матричных элементов модифицированных сферических функций, а также углового и спинового моментов.

Множители

$$\Phi_{p_1p\lambda}^m = (-1)^\lambda [(2p_1 + 1)(2p + 1)]^{1/2} \times \{ \{ \mathbf{e}_2 \otimes \mathbf{e}'^* \}_{p_1} \otimes [\mathbf{n}_1, \mathbf{e}_1] \}_{p, -\lambda}, \tag{9}$$

$$\Phi_{p_1 p_2}^q = (-1)^{\lambda} [(2p_1 + 1)(2p_2 + 1)]^{1/2} \times \{ \{ \mathbf{e}_2 \otimes \mathbf{e}^{*'} \}_{p_1} \otimes \{ \mathbf{n}_1 \otimes \mathbf{e}_1 \}_{p_2} \}_{p, -\lambda} \quad (10)$$

определяют зависимость амплитуд (5) и (6) от векторов поляризации падающих и генерированной волн, а также от единичного волнового вектора первой волны  $\mathbf{n}_1$ .

При когерентном рассеянии ориентация атомного момента не изменяется, т. е.  $M'_0 = M_0$ . После усреднения по атомному ансамблю (по магнитному квантовому числу  $M_0$ ) в уравнениях (5) и (6) остается только слагаемое с  $p = 0$ , и амплитуда когерентного рассеяния для  $L_0 = 1, L_2 = 0, J_0 = J_2 = 1/2, J_1 = 3/2$  может быть представлена в виде

$$U_{\text{coh}} = \frac{A}{2\epsilon\epsilon'} \left[ a_{10}^m \Phi_{10}^m + \frac{2i\omega_1 R}{\sqrt{6}} a_{20}^q \Phi_{20}^q \right] = \frac{iA}{54\epsilon\epsilon'} [(1+Q)(\mathbf{n}_1 \mathbf{e}_2)(\mathbf{e}^{*'} \mathbf{e}_1) - (1-Q)(\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2)(\mathbf{e}^{*'} \mathbf{n}_1)], \quad (11)$$

где  $Q = 3\omega_1 R/5$  определяет отношение E2- и M1-амплитуд в (1).

Из (11) можно определить некоторые особенности поляризационной зависимости когерентного резонансного сложения частот:

– Амплитуда (11) исчезает для коллинеарного распространения падающей и рассеянной волн:  $U_{\text{coh}}(\mathbf{n}_1 = \mathbf{n}_2 = \mathbf{n}') = 0$ . Поэтому когерентное смешивание частот может наблюдаться только для неколлинеарных волн.

– Отсутствует симметрия амплитуды  $U_{\text{coh}}$  относительно перестановки векторов поля падающих излучений, поскольку первое из них электроквадрупольное или магнитодипольное, а второе электродипольное. Вектор поляризации рассеянной волны в случае линейной поляризации падающей волны  $\{ \omega_1, \mathbf{e}_1 \}$  лежит в плоскости ее поляризации (в плоскости векторов  $\mathbf{e}_1$  и  $\mathbf{n}_1$ ) и зависит от компоненты вектора  $\mathbf{e}_2$  в этой плоскости –  $U_{\text{coh}} = 0$ , если эта компонента нулевая, т. е.  $\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2 = \mathbf{n}_1 \mathbf{e}_2 = 0$  (что соответствует  $\mathbf{e}_2 = [\mathbf{e}_1, \mathbf{n}_1]$  – нормали к плоскости поляризации первой волны).

– Отдельные слагаемые в фигурных скобках уравнения (11) определяют сечения когерентного рассеяния  $d\sigma \sim |U_{\text{coh}}|^2$  для двух взаимно перпендикулярных поляризаций второй волны:

$$d\sigma_1 = d\sigma(\mathbf{e}_2 = \mathbf{n}_1) \sim |1+Q|^2, \quad (12)$$

$$d\sigma_2 = d\sigma(\mathbf{e}_2 = \mathbf{e}_1) \sim |1-Q|^2.$$

Это позволяет ввести степень линейной поляризации [4], определив ее как отношение разности к сумме сечений,

$$D_{\text{coh}} = \frac{d\sigma_1 - d\sigma_2}{d\sigma_1 + d\sigma_2} = \frac{2Q}{1+Q^2}. \quad (13)$$

Максимум абсолютного значения  $D_{\text{coh}} = \pm 1$  соответствует  $Q = \pm 1$ , т. е. равенству вкладов M1- и E2-амплитуд в  $U_{\text{coh}}$ ; при  $Q \rightarrow 0$  или  $Q \rightarrow \pm\infty$  (когда одно из слагаемых в (1) исчезает)  $D_{\text{coh}} \rightarrow 0$ . Таким образом, относительный вклад M1- и E2-взаимодействий в дипольно запрещенную амплитуду определяет поляризационную зависимость процесса смешивания частот. Вектор поляризации волны суммарной частоты ортогонален  $\mathbf{e}_2$  в обоих случаях, т. е.  $\mathbf{e}' = \mathbf{n}_1$  для  $\mathbf{e}_2 = \mathbf{e}_1$ , и наоборот,  $\mathbf{e}' = \mathbf{e}_1$  для  $\mathbf{e}_2 = \mathbf{n}_1$ .

– Для  $\mathbf{e}_2 = (\mathbf{e}_1 \pm \mathbf{n}_1)/\sqrt{2}$  вектор поляризации волны суммарной частоты, соответствующий E2-рассеянию, параллелен вектору  $\mathbf{e}_2$ , тогда как поляризация M1-фотонов ортогональна  $\mathbf{e}_2$ ,

$$d\sigma(\mathbf{e}_2 = \frac{\mathbf{e}_1 \pm \mathbf{n}_1}{\sqrt{2}}) \sim \left| Q(\mathbf{e}_2 \mathbf{e}^{*'}) + \left( \frac{\mathbf{e}_1 \mp \mathbf{n}_1}{\sqrt{2}} \mathbf{e}^{*'} \right) \right|^2. \quad (14)$$

Таким образом, E2- и M1-вклады могут быть отделены друг от друга с помощью поляризационного анализа волны суммарной частоты. При суммировании по поляризациям рассеянной волны интерференция между слагаемыми в (14) исчезает, что дает

$$\sum_{\mathbf{e}'} d\sigma(\mathbf{e}_2 = \frac{\mathbf{e}_1 \pm \mathbf{n}_1}{\sqrt{2}}) \sim Q^2 + 1.$$

Любое из представленных в (12)–(14) поляризационных свойств процесса резонансного трехволнового смешивания можно использовать для определения отношения  $Q$  из соответствующих измерений эффективности когерентного неколлинеарного рассеяния волны суммарной частоты.

Изменение расстройки резонансов не влияет на соотношение сечений и может лишь поменять их абсолютные значения и соответствующие эффективности генерации. Комплексный резонансный множитель  $\epsilon\epsilon'$  стоит за скобками в выражении для амплитуды (11) и не вносит никакого вклада в интерференцию слагаемых внутри скобок. Отношение  $Q$  действительно, поэтому между M1- и E2-вкладами нет разности фаз, которая могла бы повлиять, например, на зависимость сечения от спиральности падающих волн или от степени круговой поляризации генерируемого излучения [1, 5]. Таким образом, диссипационно зависимые поляризационные эффекты (эффекты ширины линий) не могут проявиться в когерентном смешивании частот свободными атомами.

### 3. Сечение коллинеарного рассеяния фотонов суммарной частоты свободными атомами

Сечение рассеяния фотонов суммарной частоты определяется амплитудой (см. (1), (5) и (6))

$$U = \frac{A}{2\epsilon\epsilon'} \sum_{p_2} C_{J_0 M_0 p_2}^{J_0 M'_0} \sum_{p_1} \left[ a_{p_1 p_2}^m \Phi_{p_1 p_2}^m + i\omega_1 R \sqrt{\frac{2}{3}} a_{p_1 p_2}^q \Phi_{p_1 p_2}^q \right]. \quad (15)$$

После возведения в квадрат, усреднения по магнитным квантовым числам  $M_0$  начального состояния и суммирования по квантовым числам конечного состояния  $M'_0$  сечение можно записать в виде

$$d\sigma \sim \sum_{M_0 M'_0} \frac{|U|^2}{2J_0 + 1} = \left| \frac{A}{2\epsilon\epsilon'} \right|^2 \sum_{p=0}^{2J_0} (\mathbf{T}_p \mathbf{T}_p^*), \quad (16)$$

где

$$\mathbf{T}_p = \frac{1}{(2p+1)^{1/2}} \sum_{p_1} \left[ a_{p_1 p}^m \Phi_{p_1 p}^m + i\omega_1 R \sqrt{\frac{2}{3}} a_{p_1 p}^q \Phi_{p_1 p}^q \right] \quad (17)$$

является тензором, составленным из компонент векторов поляризации и единичного волнового вектора. Ранг  $p$  этого тензора может принимать значения от 0 до  $2J_0$ . В случае  $J_0 = 1/2$  имеем  $p = 0, 1$ , где  $\mathbf{T}_0$  пропорционально  $U_{\text{coh}}$  (11) и обращается в нуль для коллинеарных волн,

$$T_1 = \frac{1}{54} \left\{ (1+Q) [(e'^* [e_2, n_1]) e_1 - (e'^* e_2) [e_1, n_1]] - (3-Q) [(e'^* [e_1, n_1]) e_2 - (e'^* e_1) [e_2, n_1]] \right\} \quad (18)$$

очевидно отлично от нуля для рассеяния вперед.

После суммирования по состояниям поляризации фотонов суммарной частоты  $e'$  зависимость сечения рассеяния вперед от поляризации падающих волн можно записать в виде

$$d\sigma_f \sim \sum_{e'} |T_1|^2 \sim 4 + (Q+1)(Q-3) |(e_1 e_2^*)|^2 - (Q-1)^2 \xi_1 \xi_2, \quad (19)$$

где  $\xi_1$  ( $\xi_2$ ) определяет степень круговой поляризации первой (второй) волны. Отсюда можно получить зависящее от  $Q$  выражение для степени линейной поляризации в виде

$$D_f = \frac{d\sigma_{\parallel} - d\sigma_{\perp}}{d\sigma_{\parallel} + d\sigma_{\perp}} = \frac{(Q+1)(Q-3)}{(Q-1)^2 + 4}. \quad (20)$$

Для  $Q = 1$  амплитуда рассеяния вперед при  $e_1 = e_2$  исчезает вместе с  $d\sigma_{\parallel}$ ,  $T_1(e_1 = e_2) = d\sigma_{\parallel} = 0$ , поэтому  $D_f(Q = 1) = -1$ . Для  $Q = 0$ , когда  $|U^{E2}|$  пренебрежимо мал по сравнению с  $|U^{M1}|$ ,  $D_f(Q = 0) = -0.6$ .

Таким образом, степень линейной поляризации  $D$  можно использовать для измерения отношения  $Q$  как в когерентном рассеянии с неколлинеарной геометрией, так и в продольном рассеянии фотонов суммарной частоты коллинеарно с падающими волнами.

Циркулярная поляризационная асимметрия относительно одной из падающих волн может возникнуть, только если другая волна имеет ненулевую степень круговой поляризации, как это видно из (19). Тем не менее, циркулярного дихроизма в обычном понимании здесь нет, поскольку поперечное сечение не изменяется при одновременном изменении знака спиральности обеих волн ( $\xi_1 \rightarrow -\xi_1$  и  $\xi_2 \rightarrow -\xi_2$ ).

#### 4. Сечение рассеяния фотонов разностной частоты

Волна разностной частоты может быть генерирована излучением двух лазеров с частотами  $\omega'$  и  $\omega_2$ , индуцирующим переход атомов в состояние  $|nL_0J_1\rangle$ , из которого возможно излучение (спонтанное или вынужденное) фотонов частоты  $\omega_1 = \omega' - \omega_2$ , соответственно процессу, представленному на рис.1,а. Амплитуды E2- и M1-рассеяния в этом случае определяются выражениями (5) и (6), в которых частоты  $\omega$  и вектора поляризации  $e$  для всех трех волн следует заменить на  $-\omega$  и  $e^*$ . Вполне очевидно, что аналогичный эффект рассеяния фотонов  $\omega_2$  может быть индуцирован в рассматриваемой системе двумя лазерами с частотами  $\omega'$  и  $\omega_1$ . В данном разделе рассматриваются оба случая.

Амплитуда когерентной генерации E2–M1-резонансной волны  $\{\omega_1, e_1\}$ , которая может быть записана в виде

$$U_{\text{coh}1} = \frac{iA}{54\epsilon\epsilon'} \left\{ (1-Q)(n_1 e_2^*)(e' e_1^*) - (1+Q)(e_1^* e_2^*)(e' n_1) \right\}, \quad (21)$$

также исчезает, если волновой вектор  $n_1$  генерированной волны перпендикулярен плоскости векторов поляризации падающих волн. Поэтому когерентная генерация волны разностной частоты возможна только для неколлинеарного распространения волн. Свойства такого рассеяния подобны перечисленным выше для рассеяния волны суммарной частоты с заменой падающих волн  $\{e_1, \omega_1\}$  и  $\{e_2, \omega_2\}$  на  $\{e', \omega'\}$  и  $\{e_2^*, -\omega_2\}$  и рассеянной волны  $\{e'^*, -\omega'\}$  на  $\{e_1^*, -\omega_1\}$ .

Уравнение (21) выглядит более симметричным по отношению к векторам падающих волн,  $e'$  и  $e_2^*$ , поскольку обе волны индуцируют дипольно разрешенные резонансные переходы с заселением состояния  $|nL_0J_1\rangle$ , переход из которого в основное состояние сопровождается излучением фотонов  $\{e_1, \omega_1\}$ . Тем временем, амплитуда (11) описывает E2–E1-резонансное возбуждение состояния  $|n_2L_2J_2\rangle$ , из которого следует электродипольный переход в основное состояние с излучением фотонов  $\{e', \omega'\}$ . Поэтому зависимости сечений когерентных процессов от поляризации падающих волн и от E2/M1-отношения  $Q$  в этих случаях различны. Из уравнения (21) видны следующие два свойства когерентного рассеяния.

Во-первых, для коллинеарных падающих волн,  $n_2 = n'$ , с одинаковой линейной поляризацией,  $e_2 = e'$ , магнитодипольный вклад исчезает и E2-амплитуда полностью определяет сечение рассеяния под прямым углом,  $n_1 \perp n_2$ ,

$$d\sigma_{\parallel} \sim Q^2.$$

Для взаимно перпендикулярных поляризаций,  $e_2 \perp e' = (n_1 \pm [n_2, n_1])/\sqrt{2}$ , сечение  $d\sigma_{\perp}$  определяется только M1-амплитудой и остается независимым от  $Q$ .

Во-вторых, для ортогональных волн,  $e' = n_2 \perp n' = e_2$ , и волны разностной частоты вдоль одной из них сечение имеет вид

$$d\sigma|_{n_1=n_2} = d\sigma' \sim (1+Q)^2, \quad d\sigma|_{n_1=n'} = d\sigma_2 \sim (1-Q)^2.$$

Таким образом, можно ввести степень линейной поляризации, которая зависит от отношения  $Q$  по аналогии с (13) и (20),

$$D_{\text{coh}}^{(1)} = \frac{d\sigma' - d\sigma_2}{d\sigma' + d\sigma_2} = \frac{2Q}{1+Q^2}. \quad (22)$$

Этот случай для практики более удобен, поскольку позволяет измерять оба сечения одновременно в одном и том же эксперименте.

Коллинеарное рассеяние вдоль вектора  $n = n_1 = n_2 = n'$  определяется выражением (18), в котором следует сделать замену  $\{e, \omega\} \rightarrow \{e^*, -\omega\}$ . Разложение вектора (18) по векторам поляризации падающих волн  $e'$  и  $e_2$  можно выполнить, используя следующие преобразования комплексных векторов поляризации:

$$(e' [e_2^*, n_1]) e_1^* = (e_1^* [e_2^*, n]) e' - (e_1^* [e', n]) e_2^*, \quad (23)$$

$$(e' e_2^*) [e_1^*, n_1] = (e_2^* [e_1^*, n]) e' + (e_1^* e') [e_2^*, n]. \quad (24)$$

Подстановка этих преобразований в (18) дает:

$$T_1 = \frac{1}{27} \left\{ (1-Q)(e_1^* [e_2^*, n]) e' - 2(e_1^* [e', n]) e_2^* - 2(e_1^* e') [e_2^*, n] \right\}. \quad (25)$$

При расчете сечения рассеяния вперед следует проинтегрировать суммирование по состояниям поляризации рассеиваемой волны  $e_1$ :

$$d\sigma \sim 4 + (Q + 1)^2 - 4(1 + Q)\xi_2\xi_1'. \quad (26)$$

В этом выражении зависимость от поляризации падающих волн проявляется в виде зависимости от степени циркулярной поляризации  $\xi$ .

Таким образом, в отличие от процесса суммирования частот (19), сечение рассеяния вперед для волны разностной частоты (26) зависит только от степени круговой поляризации падающих волн  $e_1'$  и  $e_2$ . Эта зависимость включает также фактор  $Q$ , описывающий вклад E2-взаимодействия, который может быть определен из разности сечений для правой и левой круговой поляризации одной из падающих волн при фиксированной (ненулевой) степени круговой поляризации  $\xi$  другой волны.

Аналогичные результаты получены нами для генерации волны с частотой  $\omega_2$ . Амплитуда когерентного рассеяния фотонов  $\{\omega_2, e_2\}$  определяется соотношением (21). Теперь фиксированы векторы поляризации  $e_1$  и  $e_1'$ . Таким образом, свойства этой амплитуды подобны свойствам амплитуды (11) с заменой  $e_1' \leftrightarrow e_2^*$ ,  $e_1 \rightarrow e_1^*$  и  $Q \rightarrow -Q$ . Степень линейной поляризации для перпендикулярных падающих волн  $n_1 \perp n_1'$  и  $n_2 = n_1'$  может быть представлена в виде

$$D_{\text{coh}}^{(2)} = \frac{|U_{\text{coh}1}(e_1' = n_1)|^2 - |U_{\text{coh}1}(e_1' = e_1)|^2}{|U_{\text{coh}1}(e_1' = n_1)|^2 + |U_{\text{coh}1}(e_1' = e_1)|^2} = \frac{2Q}{1 + Q^2}. \quad (27)$$

Сечение коллинеарного рассеяния определяется вектором (25), который можно представить в виде разложения по векторам поляризации падающих волн с помощью тождеств (23), (24) с заменой  $e_1^* \leftrightarrow e_2^*$ :

$$T_1 = \frac{1}{27} \{ (3 + Q)(e_2^*[e_1^*, n])e_1' - 2(e_2^*[e_1', n])e_1^* - 2(e_2^*e_1')[e_1^*, n] \}. \quad (28)$$

Соответствующее сечение после суммирования по поляризациям генерируемой волны  $e_2$  может быть записано в виде, аналогичном (26) с заменой  $\xi_2$  на  $-\xi_1$ . Таким образом, в отличие от волны суммарной частоты,  $\{e_1', \omega_1'\}$ , коллинеарное рассеяние волны разностной частоты,  $\{e_1, \omega_1\}$  или  $\{e_2, \omega_2\}$ , зависит только от степени круговой поляризации падающих волн.

## 5. Численные оценки отношения E2- и M1-амплитуд

Численное значение радиального квадрупольного матричного элемента  $R = \langle nP_{1/2}|r^2|nP_{3/2}\rangle$  можно рассчитать по методу модельного потенциала для валентного электрона в атоме [3, 6]. Радиальные волновые функции в этом приближении аналогичны кулоновским функциям. Данные для энергий атомных уровней [7, 8] дают такие значения главных квантовых чисел и орбитальных параметров для волновых функций основного и метастабильного состояний, при которых  $Q = 0.3516$  для Tl и  $Q = 0.1003$  для In. Соответствующие значения степени линейной поляризации  $D_{\text{coh}} = 0.63$ ,  $D_f = -0.81$  для Tl и  $D_{\text{coh}} = 0.2$ ,  $D_f = -0.66$  для In. Хотя одноэлектронный метод модельного потенциала не может претендовать на высокую точность расчета для отношения E2/M1-амплитуд,

он дает вполне правильное значение для отношения амплитуд спонтанного излучения [9]

$$\chi = \left( \frac{|\langle 6P_{1/2}|\hat{V}_q|6P_{3/2}\rangle|^2}{|\langle 6P_{1/2}|\hat{V}_m|6P_{3/2}\rangle|^2} \right)^{1/2} = \frac{\omega_1 \langle 6P_{1/2}||r^2 C_2(\theta, \varphi)||6P_{3/2}\rangle}{\sqrt{3} \langle 6P_{1/2}||\hat{J} + \hat{S}||6P_{3/2}\rangle},$$

где выполнено усреднение по магнитным квантовым числам начального и суммирование для конечного состояния как в числителе, так и в знаменателе подкоренной дроби. Эту величину можно выразить через радиальный интеграл  $R$  и отношение  $Q$  для амплитуд смешивания частот:

$$\chi = \frac{\omega_1 R}{\sqrt{5}} = \frac{\sqrt{5}}{3} Q.$$

Величина  $Q = 0.3516$  соответствует  $\chi = 0.262$ , что отличается от экспериментально измеренного значения  $\chi_{\text{exp}} = 0.2387 \pm 0.0038$  [9] менее, чем на 10 %.

## 6. Заключение

Численные значения степени поляризации (13), (20), (22) и (27) могут дать существенную спектроскопическую информацию о внутренней структуре атомных уровней и о мультипольных матричных элементах радиационных переходов. Таким образом, исследование поляризационной зависимости сечений трехволнового смешивания в атомах может быть полезным для определения атомной структуры. На основе смешивания частот резонансных поляризованных волн в атомах могут быть разработаны новые методы лазерной спектроскопии. Знание поляризационной зависимости амплитуд смешивания частот может быть полезным и для эффективного управления процессом преобразования лазерных частот в атомарных газах.

Постоянное электрическое или магнитное поле нарушает сферическую симметрию атома и может стимулировать процесс коллинеарной когерентной генерации волн суммарной или разностной частоты [1, 5]. Поэтому подробные исследования индуцированных постоянными полями резонансных процессов смешивания частот в различных атомарных средах представляются перспективными как для получения новой информации о внутренней структуре атомов, спин-орбитальных взаимодействиях и матричных элементах радиационных переходов, так и для развития высокоэффективных методов преобразования лазерных частот.

Работа выполнена при поддержке Фонда гражданских исследований и развития США (US CRDF) и Министерства образования РФ (грант № VZ-010-0).

1. Khalev K.V., Ovsianikov V.D., Chernushkin V.V. *J. Phys. B*, **35**, 2283 (2002).
2. Варшавский Д.А., Москалев А.Н., Херсонский В.К. *Квантовая теория углового момента* (Л.: «Наука», 1975, с. 440).
3. Manakov N.L., Ovsianikov V.D., Rapoport L.P. *Phys. Rep.*, **141**, 319 (1986).
4. Bayram S.B., Havey M., Rosu M., Sieradzan A., Derevianko A., Johnson W.R. *Phys. Rev. A*, **61**, 050502(R) (2000).
5. Manakov N.L., Ovsianikov V.D. *J. Phys. B*, **33**, 2057 (2000).
6. Simons G. *J. Chem. Phys.*, **55**, 756 (1971).
7. Moore C.E. *Atomic Energy Levels, NBS Circular No. 467, V. 3* (Washington: US Government Printing Office, 1958).
8. Радциг А.А., Смирнов Б.М. *Параметры атомов и атомных ионов. Справочник* (М.: Энергоатомиздат, 1986, с. 344).
9. Majumder P.K., Tsai L.L. *Phys. Rev. A*, **60**, 267 (1999).