Фемтосекундный лазер (продолжение).

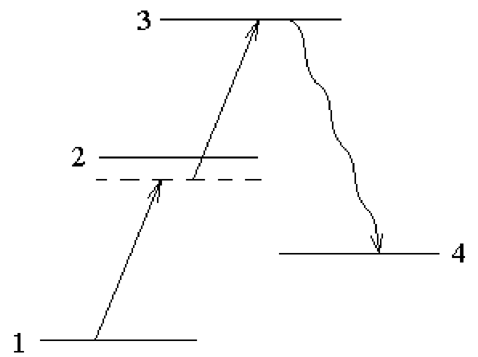
Световая пуля. Поперек луча свет сжимается в результате явления самофокусировки, если световое поле увеличивает показатель преломления среды. Причина сокращения длительности импульса состоит в том, что при распространении импульса через насыщаемый поглотитель (специальное стекловолокно) края импульса поглощаются существенно сильнее, чем центр (амплитуда которого намного больше). Это эквивалентно уменьшению длительности импульса. В экспериментах в плавленом кварце фемтосекундного лазерного импульса (волоконный тулиевый Tm лазер) на длине волны 1800 нм минимальная длительность световой пули достигла 13.5 фс, что составляет около двух осцилляций светового поля. Диаметр световой пули порядка 10 мкм, длина — 5 мкм, энергия — 0.1 Дж. Световая пуля сопровождается излучением суперконтинуума.

Optics Letters, **38** (1), 16, (2013).
Laser Physics Letters **10**, 105401 (2013).
Квантовая электроника **43**, 326, (2013).

Резонансы двухфотонного поглощения без доплеровского уширения.

Рассмотрим неоднородно уширенные линии спектральных переходов $\Gamma << kU$.

Рассмотрим следующую схему уровней энергии.



Пусть переходы $1 \to 2$ и $2 \to 3$ разрешены в дипольном приближении. Как показывает теория, в таком случае переход $1 \to 3$ обязательно запрещен. То есть

$$\begin{cases} p_{12} \neq 0 \\ p_{23} \neq 0 \\ p_{13} = 0 \end{cases}.$$

Пусть лазерное излучение имеет такую частоту ω, что энергия двух фотонов $2\hbar\omega$ примерно равна энергии перехода с 1-го уровня на 3-й:

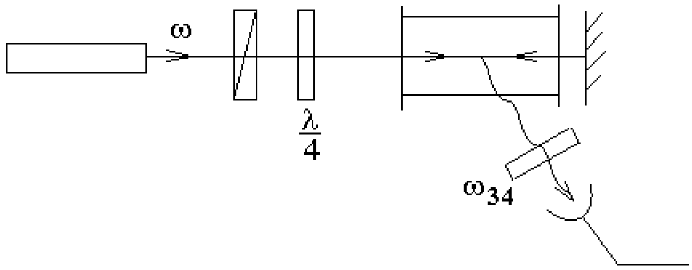
$|2\omega - \omega_{31}| \approx kU$, где $k = \dfrac{2\pi}{\lambda}$ — волновое число, $U = \sqrt{\dfrac{2k_Б T}{m}}$ — наиболее вероятная скорость молекул газа.

Пусть уровень энергии 2 находится близко к середине между уровнями 1 и 3, но различие гораздо больше доплеровской ширины линий:

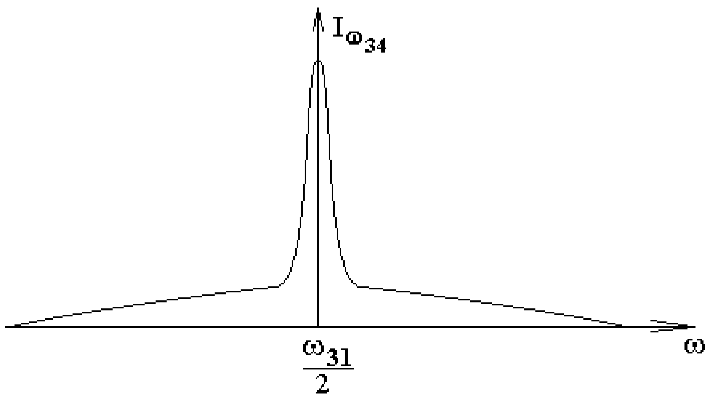
$$\left|\frac{\omega_{31}}{2}-\omega_{21}\right| >> kU\ .$$

В эксперименте регистрируется мощность спонтанного излучения на переходе $3 \to 4$.

Оптическая схема эксперимента.



В эксперименте получают следующую зависимость интенсивности на приемнике света от частоты генерации лазера.



Качественное объяснение вида зависимости.

Сигнал состоит из двух контуров: узкого высокого и низкого широкого.

Если два фотона поглощаются из встречных световых волн, то в системе отсчета молекулы частоты фотонов будут иметь значения $(\omega - kV_z)$ и $(\omega + kV_z)$. Тогда из баланса энергии получим:

$$\hbar(\omega - kV_z) + \hbar(\omega + kV_z) = \hbar\omega_{31} \qquad =>$$

$\omega = \dfrac{\omega_{31}}{2}$ — узкий по частоте лазера ω сигнал; V_z — любое, то есть в формировании сигнала участвуют молекулы со всеми возможными скоростями, поэтому сигнал имеет большую амплитуду.

Если два фотона поглощаются из одной световой волны, то из баланса энергии в системе отсчета молекулы получим:

$$2\hbar(\omega - kV_z) = \hbar\omega_{31} \qquad =>$$

ω — любое, следовательно, сигнал — широкий контур; $V_z = \dfrac{2\omega - \omega_{31}}{2k}$, то есть в формировании сигнала на каждой частоте ω участвует небольшой набор молекул с фиксированной лучевой скоростью, следовательно, сигнал имеет малую амплитуду.

Количественное описание.

Рассмотрим уравнение Неймана для матрицы плотности ρ:

$$i\hbar\dot{\hat{\rho}} = \left[\hat{H}, \hat{\rho}\right],$$

где $\hat{H} = \hat{H}_0 - \left(\hat{\vec{p}}, \vec{E}(t)\right) = \hat{H}_0 - \hat{p}E(t)$ — оператор Гамильтона, $\hat{H}_0$ — невозмущенный световым полем оператор Гамильтона, $\hat{\vec{p}}$ — оператор дипольного момента молекулы, $\vec{E}(t)$ — напряженность светового поля, $\hat{p}$ — оператор проекции дипольного момента молекулы на единичный вектор поляризации световой волны.

Пусть для простоты встречные световые волны имеют одинаковую вещественную амплитуду $\mathcal{E}_0$, тогда

$$E(t) = \mathcal{E}_0 \cdot \cos\left(\omega_1^{'} t + \varphi_{10}\right) + \mathcal{E}_0 \cdot \cos\left(\omega_2^{'} t + \varphi_{20}\right)$$

Здесь $\begin{cases} \omega_1^{'} = \omega - kV_z \\ \omega_2^{'} = \omega + kV_z \end{cases}$

Возьмем уравнение Неймана

$$i\hbar\dot{\hat{\rho}} = \left[\hat{H}_0 - \hat{p}E(t), \hat{\rho}\right]$$

и раскроем коммутатор

$$i\hbar\dot{\hat{\rho}} = \hat{H}_0\hat{\rho} - \hat{\rho}\hat{H}_0 - E(t)\cdot\left(\hat{p}\hat{\rho} - \hat{\rho}\hat{p}\right).$$

Подставим в это уравнение матрицы операторов в представлении собственных функций невозмущенного оператора Гамильтона $\hat{H}_0$.

Матрица плотности будет иметь вид произвольной эрмитовой матрицы:

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} & \rho_{13} \\ \rho_{21} & \rho_{22} & \rho_{23} \\ \rho_{31} & \rho_{32} & \rho_{33} \end{pmatrix}, \text{ где } \rho_{ik} = \rho_{ki}^{*}.$$

Невозмущенный оператор Гамильтона примет в этом представлении диагональный вид:

$$\hat{H}_0 = \begin{pmatrix} E_1 & 0 & 0 \\ 0 & E_2 & 0 \\ 0 & 0 & E_3 \end{pmatrix}.$$

Оператор проекции дипольного момента перехода на единичный вектор поляризации световой волны, наоборот, имеет нулевые диагональные элементы:

$$\hat{p}=\begin{pmatrix} 0 & p_{12} & 0 \\ p_{21} & 0 & p_{23} \\ 0 & p_{32} & 0 \end{pmatrix}.$$

Здесь учтено, что $p_{13}=p_{31}=0$.

Напомним, что матричные элементы оператора проекции дипольного момента могут быть вычислены по следующим формулам:

$$p_{nk}=\int \psi_n^* \cdot (\vec{p},\vec{e}) \cdot \psi_k \cdot dV,$$

где $\vec{p}=\sum_i q_i \vec{r}_i$ — дипольный момент молекулы, $\vec{e}$ — единичный вектор поляризации световой волны.

Выберем фазы собственных функций ψ_1 и ψ_3 невозмущенного оператора Гамильтона так, чтобы все матричные элементы проекции дипольного момента были вещественными $\begin{cases} p_{12}=p_{21} \\ p_{23}=p_{32} \end{cases}$, тогда

$$\hat{p}=\begin{pmatrix} 0 & p_{12} & 0 \\ p_{12} & 0 & p_{23} \\ 0 & p_{23} & 0 \end{pmatrix}$$ — оператор проекции дипольного момента на единичный вектор поляризации световой волны.

Подставим матрицы операторов $\hat{H}_0, \hat{\rho}, \hat{p}$ в уравнение $i\hbar \dot{\hat{\rho}}=\hat{H}_0\hat{\rho}-\hat{\rho}\hat{H}_0-E(t)\cdot(\hat{p}\hat{\rho}-\hat{\rho}\hat{p})$, перемножим матрицы, добавим феноменологическое затухание и накачку, и получим:

$$\begin{cases} \dot{\rho}_{11}+\gamma_1\rho_{11}=\gamma_1\rho_{11}^0-i\dfrac{p_{12}E(t)}{\hbar}(\rho_{12}-\rho_{21}) \\ \dot{\rho}_{22}+\gamma_2\rho_{22}=\gamma_2\rho_{22}^0+i\dfrac{p_{12}E(t)}{\hbar}(\rho_{12}-\rho_{21})-i\dfrac{p_{23}E(t)}{\hbar}(\rho_{23}-\rho_{32}) \\ \dot{\rho}_{33}+\gamma_3\rho_{33}=\gamma_3\rho_{33}^0+i\dfrac{p_{23}E(t)}{\hbar}(\rho_{23}-\rho_{32}) \\ \dot{\rho}_{21}+i\omega_{21}\rho_{21}+\Gamma_{12}\rho_{21}=i\dfrac{p_{12}E(t)}{\hbar}(\rho_{11}-\rho_{22})+i\dfrac{p_{23}E(t)}{\hbar}\rho_{31} \\ \dot{\rho}_{31}+i\omega_{31}\rho_{31}+\Gamma_{13}\rho_{31}=i\dfrac{p_{23}E(t)}{\hbar}\rho_{21}-i\dfrac{p_{12}E(t)}{\hbar}\rho_{32} \\ \dot{\rho}_{32}+i\omega_{32}\rho_{32}+\Gamma_{23}\rho_{32}=i\dfrac{p_{23}E(t)}{\hbar}(\rho_{22}-\rho_{33})-i\dfrac{p_{12}E(t)}{\hbar}\rho_{31} \end{cases}.$$

Далее нужно выполнить два пункта:

1). Решить уравнения и найти ρ_{33}.

2). Взять интеграл $I_{\omega_{34}} \sim N_3\gamma_{34}^0 = \gamma_{34}^0 \cdot \int\limits_{-\infty}^{+\infty} N_{0_{V_z}} \cdot \rho_{33}(V_z) \cdot dV_z$. Здесь γ_{34}^0 — частота спонтанных переходов с уровня энергии 3 на уровень 4.

Для упрощения решения системы уравнений нужно учитывать принятые приближения:

$$\begin{cases} \Gamma << kU \\ \left|2\omega - \omega_{31}\right| \approx kU \\ \left|\omega - \omega_{21}\right| >> kU \\ \left|\omega - \omega_{32}\right| >> kU \end{cases}.$$

Чтобы решение не было слишком громоздким, будем считать, что $\rho_{22}^0 = \rho_{33}^0 = 0$.

Будем искать стационарное решение системы: $\dot{\rho}_{11} = \dot{\rho}_{22} = \dot{\rho}_{33} = 0$. Тогда

$$\begin{cases} \gamma_1\rho_{11} = \gamma_1\rho_{11}^0 - i\dfrac{p_{12}E(t)}{\hbar}(\rho_{12} - \rho_{21}) \\ \gamma_2\rho_{22} = i\dfrac{p_{12}E(t)}{\hbar}(\rho_{12} - \rho_{21}) - i\dfrac{p_{23}E(t)}{\hbar}(\rho_{23} - \rho_{32}) \\ \gamma_3\rho_{33} = i\dfrac{p_{23}E(t)}{\hbar}(\rho_{23} - \rho_{32}) \\ \dot{\rho}_{21} + i\omega_{21}\rho_{21} + \Gamma_{12}\rho_{21} = i\dfrac{p_{12}E(t)}{\hbar}(\rho_{11} - \rho_{22}) + i\dfrac{p_{23}E(t)}{\hbar}\rho_{31} \\ \dot{\rho}_{31} + i\omega_{31}\rho_{31} + \Gamma_{13}\rho_{31} = i\dfrac{p_{23}E(t)}{\hbar}\rho_{21} - i\dfrac{p_{12}E(t)}{\hbar}\rho_{32} \\ \dot{\rho}_{32} + i\omega_{32}\rho_{32} + \Gamma_{23}\rho_{32} = i\dfrac{p_{23}E(t)}{\hbar}(\rho_{22} - \rho_{33}) - i\dfrac{p_{12}E(t)}{\hbar}\rho_{31} \end{cases} \qquad (1)$$

Ищем решение в духе приближения вращающейся волны.

Будем искать решение методом последовательных приближений по амплитуде светового поля. Световое поле — малый параметр.

При нулевой амплитуде светового поля (в нулевом приближении по амплитуде поля) отличен от нуля единственный член матрицы плотности

$\rho_{11} = \rho_{11}^0$.

Будем говорить, что он пропорционален нулевой степени амплитуды светового поля:

$\rho_{11} \sim \mathcal{E}_0^0$.

В следующем приближении, в первом приближении по амплитуде поля, правая часть уравнений системы (1) для элементов матрицы плотности отлична от нуля только в 4-ом уравнении

$$\dot{\rho}_{21}+i\omega_{21}\rho_{21}+\Gamma_{12}\rho_{21}=i\frac{p_{12}E(t)}{\hbar}(\rho_{11}-\rho_{22})+i\frac{p_{23}E(t)}{\hbar}\rho_{31}$$

и только за счет слагаемого $i\frac{p_{12}E(t)}{\hbar}\rho_{11}$ в правой части, где $\rho_{11}\neq 0$. То есть уравнение в первом приближении имеет вид:

$$\dot{\rho}_{21}+i\omega_{21}\rho_{21}+\Gamma_{12}\rho_{21}=i\frac{p_{12}E(t)}{\hbar}\rho_{11}^{0}.$$

Здесь

$$E(t)=\mathcal{E}_0\cdot\frac{e^{i\omega_1' t}+e^{-i\omega_1' t}}{2}+\mathcal{E}_0\cdot\frac{e^{i\omega_2' t}+e^{-i\omega_2' t}}{2}.$$

Будем искать решение для элемента ρ_{21} в виде соответствующих четырех комплексных экспонент с неизвестными коэффициентами. В духе приближения вращающейся волны два из четырех слагаемых будут очень малы и могут быть отброшены.

С двумя оставшимися комплексными экспонентами из четырех экспонент светового поля уравнение примет вид:

$$\dot{\rho}_{21}+i\omega_{21}\rho_{21}+\Gamma_{12}\rho_{21}=i\frac{p_{12}\mathcal{E}_0}{2\hbar}\rho_{11}^{0}\left(e^{-i\omega_1' t}+e^{-i\omega_2' t}\right).$$

Ищем решение в виде двух слагаемых пропорциональных этим двум экспонентам, приравниваем друг другу коэффициенты при этих экспонентах в правой и левой частях равенства и получаем:

$$\rho_{21}=i\frac{p_{12}\mathcal{E}_0\rho_{11}^{0}}{2\hbar}\cdot\left(\frac{e^{-i\omega_1' t}}{\Gamma_{12}+i\left(\omega_{21}-\omega_1'\right)}+\frac{e^{-i\omega_2' t}}{\Gamma_{12}+i\left(\omega_{21}-\omega_2'\right)}\right),$$

что пропорционально амплитуде светового поля $\mathcal{E}_0$.

Тогда в 1-м приближении по амплитуде поля $\mathcal{E}_0$ получаем

$\begin{cases}\rho_{11}=\rho_{11}^{0}\sim\mathcal{E}_0^{0}\\ \rho_{21}\sim\mathcal{E}_0^{1}\end{cases}$. Напомним, что $\rho_{12}=\rho_{21}^{*}$. Остальные элементы матрицы плотности в этом приближении остаются нулевыми.

Остальную часть решения системы уравнений (1) рассмотрим факультативно.

Факультативная вставка.

Чтобы получить второе приближение по амплитуде светового поля нужно решение в первом приближении подставить в правую часть уравнений системы (1) для матрицы плотности.

Теперь к уравнениям с отличной от нуля правой частью добавляются 2-е и 5-е уравнения, которые в правой части содержат слагаемые пропорциональные ρ_{21} или ρ_{12}:

$$\begin{cases} \gamma_2\rho_{22} = i\dfrac{p_{12}E(t)}{\hbar}(\rho_{12}-\rho_{21}) - i\dfrac{p_{23}E(t)}{\hbar}(\rho_{23}-\rho_{32}) \\ \dot{\rho}_{31} + i\omega_{31}\rho_{31} + \Gamma_{13}\rho_{31} = i\dfrac{p_{23}E(t)}{\hbar}\rho_{21} - i\dfrac{p_{12}E(t)}{\hbar}\rho_{32} \end{cases}.$$

Соответственно во втором приближении по амплитуде светового поля отличными от нуля становятся элементы матрицы плотности ρ_{22} и ρ_{31}, которые содержатся в левой части уравнений.

В этом приближении в правой части равенства $\rho_{32} = \overset{*}{\rho}_{23} = 0$. Тогда

$$\begin{cases} \gamma_2\rho_{22} = i\dfrac{p_{12}E(t)}{\hbar}(\rho_{12}-\rho_{21}) \\ \dot{\rho}_{31} + i\omega_{31}\rho_{31} + \Gamma_{13}\rho_{31} = i\dfrac{p_{23}E(t)}{\hbar}\rho_{21} \end{cases}.$$

Решение для элементов ρ_{22} и ρ_{31} опять ищем в духе приближения вращающейся волны. Тогда решение для элемента матрицы плотности ρ_{22}

$$\rho_{22} = \frac{p_{12}^2\mathcal{E}_0^2\rho_{11}^0}{4\hbar^2\gamma_2}\cdot$$

$$\cdot\left\{\frac{2\Gamma_{12} + \left(e^{i\left(\omega_1'-\omega_2'\right)t} + e^{i\left(\omega_2'-\omega_1'\right)t}\right)\Gamma_{12}}{\Gamma_{12}^2 + \left(\omega_1'-\omega_{21}\right)^2} + i\frac{\left(e^{i\left(\omega_1'-\omega_2'\right)t} - e^{i\left(\omega_2'-\omega_1'\right)t}\right)\left(\omega_{21}-\omega_1'\right)}{\Gamma_{12}^2 + \left(\omega_1'-\omega_{21}\right)^2}\right\} +$$

$$+\frac{p_{12}^2\mathcal{E}_0^2\rho_{11}^0}{4\hbar^2\gamma_2}\cdot$$

$$\cdot\left\{\frac{2\Gamma_{12} + \left(e^{i\left(\omega_2'-\omega_1'\right)t} + e^{i\left(\omega_1'-\omega_2'\right)t}\right)\Gamma_{12}}{\Gamma_{12}^2 + \left(\omega_2'-\omega_{21}\right)^2} + i\frac{\left(e^{i\left(\omega_2'-\omega_1'\right)t} - e^{i\left(\omega_1'-\omega_2'\right)t}\right)\left(\omega_{21}-\omega_2'\right)}{\Gamma_{12}^2 + \left(\omega_2'-\omega_{21}\right)^2}\right\}$$

оказывается гораздо меньше модуля решения для элемента ρ_{31}:

$$\rho_{31} = -\frac{p_{12}p_{23}\mathcal{E}_0^2\rho_{11}^0}{4\hbar^2}\cdot\frac{e^{-2i\omega_1't}}{\left(\Gamma_{12}+i\left(\omega_{21}-\omega_1'\right)\right)\cdot\left(\Gamma_{13}+i\left(\omega_{31}-2\omega_1'\right)\right)} -$$

$$-\frac{p_{12}p_{23}\mathcal{E}_0^2\rho_{11}^0}{4\hbar^2}\cdot\frac{e^{-2i\omega_2't}}{\left(\Gamma_{12}+i\left(\omega_{21}-\omega_2'\right)\right)\cdot\left(\Gamma_{13}+i\left(\omega_{31}-2\omega_2'\right)\right)} -$$

$$-\frac{p_{12}p_{23}\mathcal{E}_0^2\rho_{11}^0}{4\hbar^2}\cdot\frac{e^{-2i\omega t}}{\left(\Gamma_{12}+i\left(\omega_{21}-\omega_1^{'}\right)\right)\cdot\left(\Gamma_{13}+i\left(\omega_{31}-2\omega\right)\right)}-$$

$$-\frac{p_{12}p_{23}\mathcal{E}_0^2\rho_{11}^0}{4\hbar^2}\cdot\frac{e^{-2i\omega t}}{\left(\Gamma_{12}+i\left(\omega_{21}-\omega_2^{'}\right)\right)\cdot\left(\Gamma_{13}+i\left(\omega_{31}-2\omega\right)\right)}.$$

Неравенство $\rho_{22} << \left|\rho_{31}\right|$ выполняется при условии $\left|\frac{\omega_{31}}{2}-\omega_{21}\right| >> kU$ и в дальнейшем ρ_{22} можно не учитывать.

В третьем приближении по амплитуде поля нужно второе приближение подставить в правую часть уравнений системы (1).

В этом приближении отличной от нуля становится правая часть шестого уравнения

$$\dot{\rho}_{32}+i\omega_{32}\rho_{32}+\Gamma_{23}\rho_{32}=i\frac{p_{23}E(t)}{\hbar}\left(\rho_{22}-\rho_{33}\right)-i\frac{p_{12}E(t)}{\hbar}\rho_{31}$$

В этом приближении $\rho_{33}=0$, поэтому

$$\dot{\rho}_{32}+i\omega_{32}\rho_{32}+\Gamma_{23}\rho_{32}=i\frac{p_{23}E(t)}{\hbar}\rho_{22}-i\frac{p_{12}E(t)}{\hbar}\rho_{31}.$$

А с учетом $\rho_{22} << \left|\rho_{31}\right|$ получим

$$\dot{\rho}_{32}+i\omega_{32}\rho_{32}+\Gamma_{23}\rho_{32}=-i\frac{p_{12}E(t)}{\hbar}\rho_{31}.$$

Решая уравнение в духе приближения вращающейся волны, получим:

$$\rho_{32}=i\frac{p_{12}^2p_{23}\mathcal{E}_0^3\rho_{11}^0}{8\hbar^3}\cdot$$

$$\cdot\frac{1}{\Gamma_{13}+i\left(\omega_{31}-2\omega\right)}\left\{\frac{e^{-i\omega_2^{'}t}}{\Gamma_{23}+i\left(\omega_{32}-\omega_2^{'}\right)}+\frac{e^{-i\omega_1^{'}t}}{\Gamma_{23}+i\left(\omega_{32}-\omega_1^{'}\right)}\right\}\cdot$$

$$\cdot\left(\frac{1}{2\Gamma_{12}+i\left(\omega_{21}-\omega_1^{'}\right)}+\frac{1}{2\Gamma_{12}+i\left(\omega_{21}-\omega_2^{'}\right)}\right)+$$

$$+i\frac{p_{12}^2p_{23}\mathcal{E}_0^3\rho_{11}^0}{8\hbar^3}\cdot$$

$$\cdot\frac{e^{-i\omega_1^{'}t}}{\left(\Gamma_{12}+i\left(\omega_{21}-\omega_1^{'}\right)\right)\cdot\left(\Gamma_{31}+i\left(\omega_{31}-2\omega_1^{'}\right)\right)\cdot\left(\Gamma_{23}+i\left(\omega_{32}-\omega_1^{'}\right)\right)}+$$

$$+i\frac{p_{12}^2p_{23}\mathcal{E}_0^3\rho_{11}^0}{8\hbar^3}\cdot$$

$$\cdot\frac{e^{-i\omega_2' t}}{\left(\Gamma_{12}+i\left(\omega_{21}-\omega_2'\right)\right)\cdot\left(\Gamma_{31}+i\left(\omega_{31}-2\omega_2'\right)\right)\cdot\left(\Gamma_{23}+i\left(\omega_{32}-\omega_2'\right)\right)}.$$

В четвертом приближении по амплитуде светового поля нужно в правую часть уравнений системы (1) для элементов матрицы плотности подставить результат третьего приближения. В результате в третьем уравнении системы (1) появляется отличная от нуля правая часть:

$$\gamma_3\rho_{33}=i\frac{p_{23}E(t)}{\hbar}\left(\rho_{23}-\rho_{32}\right).$$

Решая это уравнение в духе приближения вращающейся волны, получим:

$$\rho_{33}=\frac{p_{12}^2p_{23}^2\mathcal{E}_0^4\rho_{11}^0\Gamma_{13}}{2\hbar^4\gamma_3}\cdot\frac{1}{\left(\omega_{21}-\omega_{32}\right)^2}\cdot$$

$$\cdot\left\{\frac{4}{\Gamma_{13}^2+\left(2\omega-\omega_{31}\right)^2}+\frac{1}{\Gamma_{13}^2+\left(2\omega_1'-\omega_{31}\right)^2}+\frac{1}{\Gamma_{13}^2+\left(2\omega_2'-\omega_{31}\right)^2}\right\}.$$

Конец факультативной вставки.

Во втором приближении по амплитуде светового поля или в первом приближении по интенсивности получаем

$$\begin{cases}\rho_{11}=\rho_{11}^0\sim\mathcal{E}_0^0\\ \rho_{21}\sim\mathcal{E}_0^1\\ \rho_{22}\sim\mathcal{E}_0^2\\ \rho_{31}\sim\mathcal{E}_0^2\end{cases}\text{, где }\begin{cases}\rho_{12}=\rho_{21}^*\\ \rho_{13}=\rho_{31}^*\end{cases}.$$

В третьем приближении по амплитуде светового поля получаем

$$\begin{cases}\rho_{11}=\rho_{11}^0\sim\mathcal{E}_0^0\\ \rho_{21}\sim\mathcal{E}_0^1\\ \rho_{22}\sim\mathcal{E}_0^2\\ \rho_{31}\sim\mathcal{E}_0^2\\ \rho_{32}\sim\mathcal{E}_0^3\end{cases}\text{, где }\begin{cases}\rho_{12}=\rho_{21}^*\\ \rho_{13}=\rho_{31}^*\\ \rho_{23}=\rho_{32}^*\end{cases}.$$

В четвертом приближении по амплитуде светового поля или во втором приближении по интенсивности получим:

$$\begin{cases} \rho_{11} = \rho_{11}^0 \sim \mathcal{E}_0^0 \\ \rho_{21} \sim \mathcal{E}_0^1 \\ \rho_{22} \sim \mathcal{E}_0^2 \\ \rho_{31} \sim \mathcal{E}_0^2 \\ \rho_{32} \sim \mathcal{E}_0^3 \\ \rho_{33} \sim \mathcal{E}_0^4 \end{cases}, \text{ где } \begin{cases} \rho_{12} = \overset{*}{\rho}_{21} \\ \rho_{13} = \overset{*}{\rho}_{31} \\ \rho_{23} = \overset{*}{\rho}_{32} \end{cases}.$$

В приведенных выше выкладках просматриваются два процесса заселения третьего уровня энергии: ступенчатый и двухфотонный.

Ступенчатый процесс заселения третьего уровня энергии:

$$\left(\rho_{11} \sim \mathcal{E}_0^0\right) \to \left(\rho_{21} \sim \mathcal{E}_0^1\right) \to \left(\rho_{22} \sim \mathcal{E}_0^2\right) \to \left(\rho_{32} \sim \mathcal{E}_0^3\right) \to \left(\rho_{33} \sim \mathcal{E}_0^4\right).$$

Двухфотонный процесс заселения третьего уровня энергии:

$$\left(\rho_{11} \sim \mathcal{E}_0^0\right) \to \left(\rho_{21} \sim \mathcal{E}_0^1\right) \to \left(\rho_{31} \sim \mathcal{E}_0^2\right) \to \left(\rho_{32} \sim \mathcal{E}_0^3\right) \to \left(\rho_{33} \sim \mathcal{E}_0^4\right).$$

Два процесса отличаются только во втором приближении по амплитуде светового поля. В ступенчатом процессе появляется вероятность обнаружить молекулу на промежуточном 2-ом уровне энергии ρ_{22}, в двухфотонном процессе появляется когерентность первого и третьего уровней ρ_{31}.

При условии того, что второй уровень достаточно далеко расположен по энергии относительно середины между первым и третьим уровнями $\left|\frac{\omega_{31}}{2} - \omega_{21}\right| >> kU$, выполняется неравенство $\rho_{22} << |\rho_{31}|$, и в этом случае ступенчатым заселением третьего уровня энергии можно пренебречь по сравнению с двухфотонным заселением.

Основные свойства двухфотонного процесса:

1. Невозможен в чистом виде двухфотонный процесс без примеси ступенчатого процесса. Двухфотонный процесс — это просто часть вклада в заселенность верхнего уровня энергии в виде слагаемых, которые получаются при решении системы уравнений для матрицы плотности методом последовательных приближений по амплитуде светового поля. Слагаемые, которые получаются через промежуточную величину ρ_{31} — это вклад двухфотонного процесса в заселенность верхнего уровня энергии. Слагаемые, которые получаются через ρ_{22} — это вклад ступенчатого процесса.

2. Двухфотонный процесс — это такой процесс, в котором вероятность заселения промежуточного уровня энергии пренебрежимо мала по сравнению с вероятностью заселения конечного уровня энергии $\rho_{22} << \rho_{33}$.

3. Двухфотонный процесс эффективнее ступенчатого при условии $|\rho_{31}| >> \rho_{22}$, что выполняется при условии того, что второй уровень достаточно далеко расположен по энергии относительно середины между первым и

третьим уровнями $\left|\frac{\omega_{31}}{2}-\omega_{21}\right|>>kU$, и энергия двух фотонов примерно соответствует энергии перехода с первого уровня на третий $\left|2\omega-\omega_{31}\right|\approx kU$.

4. Заметим, что промежуточный уровень может быть совсем далеко от середины между первым и третьим уровнями энергии. Промежуточного уровня может совсем не быть, тогда его роль будут играть все остальные уровни энергии. Каждый из остальных уровней очень плохо подходит на роль промежуточного уровня, но таких уровней бесконечно много, поэтому их вклад не так уж и мал.

Регистрируемый в опыте сигнал пропорционален заселенности третьего уровня энергии:

$N_3=\int\limits_{-\infty}^{+\infty} N_{0_{V_z}}\rho_{33}(V_z)dV_z$, где $\rho_{33}(V_z)$ получается в результате интегрирования ρ_{33}, которое получается при решении системы уравнений (1):

$$\rho_{33}=\frac{p_{12}^2 p_{23}^2 \mathcal{E}_0^4 \rho_{11}^0 \Gamma_{13}}{2\hbar^4\gamma_3}\cdot\frac{1}{\left(\omega_{21}-\omega_{32}\right)^2}\cdot$$

$$\left\{\frac{4}{\Gamma_{13}^2+\left(2\omega-\omega_{31}\right)^2}+\frac{1}{\Gamma_{13}^2+\left(2\omega_1'-\omega_{31}\right)^2}+\frac{1}{\Gamma_{13}^2+\left(2\omega_2'-\omega_{31}\right)^2}\right\},$$ где нужно подставить

$$\begin{cases}\omega_1'=\omega-kV_z\\ \omega_2'=\omega+kV_z\end{cases}.$$

В результате интегрирования $N_3=\int\limits_{-\infty}^{+\infty} N_{0_{V_z}}\rho_{33}(V_z)dV_z$ можно получить:

$$N_3=\frac{2N_0}{\gamma_3\Gamma_{13}}\cdot\frac{p_{12}^2 p_{23}^2 \mathcal{E}_0^4 \rho_{11}^0}{\hbar^4}\cdot\frac{1}{\left(\omega_{21}-\omega_{32}\right)^2}\cdot$$

$$\cdot\left\{\frac{\sqrt{\pi}}{4}\cdot\frac{\Gamma_{13}}{kU}\cdot e^{-\left(\frac{2\omega-\omega_{31}}{2kU}\right)}+\frac{\Gamma_{13}^2}{\Gamma_{13}^2+\left(2\omega-\omega_{31}\right)^2}\right\}$$

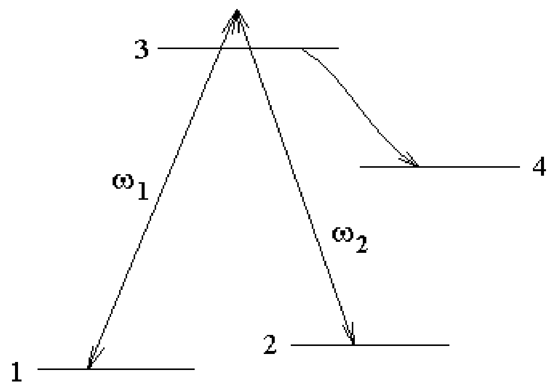
Здесь слагаемое гауссовой формы $\frac{\sqrt{\pi}}{4}\cdot\frac{\Gamma_{13}}{kU}\cdot e^{-\left(\frac{2\omega-\omega_{31}}{2kU}\right)}$ описывает широкий и низкий контур поглощения двух фотонов из одной световой волны, а лоренцевское слагаемое $\dfrac{\Gamma_{13}^2}{\Gamma_{13}^2+\left(2\omega-\omega_{31}\right)^2}$ описывает узкий и высокий контур поглощения двух фотонов из встречных световых волн.

Заметим, что узкий контур даже уже, чем в спектроскопии насыщения поглощения. Дело в том, что Γ_{13} должно быть малой величиной, так как переход между первым и третьим уровнями запрещен $p_{13}=0$. В таком случае дефазирующие и деориентирующие столкновения молекул очень маловероятны, и величина Γ_{13} определяется только спонтанными переходами с уровней 1 и 3 и столкновениями тушащими уровни 1 и 3.

CPT-резонанс.

Близким по своей природе к рассмотренному выше резонансу двухфотонного поглощения без доплеровского уширения является так называемый резонанс когерентного пленения населенности (КПН) или CPT-резонанс (coherent population trapping).

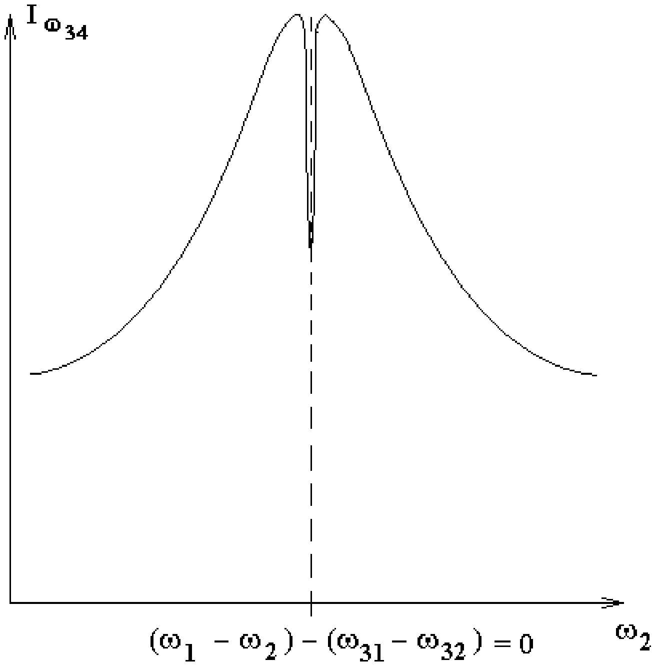
Рассмотрим атом с Λ-схемой уровней энергии, в которой нижний уровень энергии слабо расщеплен, например, сверхтонким расщеплением, уровни которого различаются ориентацией магнитного момента ядра атома.



Условие резонанса состоит в том, что разность частот двух световых полей $\left(\omega_1-\omega_2\right)$ совпадает с разностью частот двух переходов $\left(\omega_{31}-\omega_{32}\right)$.

Если условие резонанса не выполнено, то оба световых поля не слишком эффективно, но перебрасывают атомы с нижних уровней 1 и 2 на верхний уровень 3. Если условие резонанса выполнено, то становятся возможными двухфотонные переходы с уровня 1 на уровень 2 и обратно с промежуточным уровнем 3. Как показывает решение уравнений для матрицы плотности, при таких переходах уровень 3 почти не заселяется. Населенность пленяется на нижних уровнях энергии (резонанс когерентного пленения населенности). Результатом такого процесса является возникновение когерентности подуровней 1 и 2 нижнего уровня энергии, когерентность означает наличие недиагонального элемента матрицы плотности ρ_{21}.

В результате зависимость населенности уровня 3 от частоты одного из световых полей, например ω_2, имеет узкий резонансный провал, представленный на следующем рисунке.



Регистрировать заселенность уровня 3 можно, наблюдая интенсивность флюоресценции с уровня 3 на какой-либо другой уровень, например 4.

Строго говоря, резонансный провал должен быть несколько смешен относительно широкого контура пика, но если ширина провала на порядки меньше ширины пика, то его смещение на величину порядка или несколько больше ширины провала не будет заметно по сравнению с шириной пика.

Здесь большая ширина пика определяется малым временем жизни верхнего уровня, а малая ширина провала определяется большим временем поперечной релаксации подуровней нижнего уровня. Если уровни 1 и 2 являются подуровнями нижнего уровня энергии атома, то время жизни нижнего уровня бесконечно, а ширина провала определяется временем разрушения когерентности подуровней нижнего уровня, то есть временем затухания недиагонального элемента матрицы плотности, соответствующего подуровням 1 и 2.

Ширина резонанса может составлять несколько Герц, что является очень малой величиной по сравнению с оптической частотой переходов 13 и 23.

Оба резонанса и резонанс двухфотонного поглощения без доплеровского уширения и резонанс когерентного пленения населенности связаны с наличием недиагонального элемента матрицы плотности и двух световых полей. В первом случае это элемент ρ_{31}, который связывает верхний и нижний уровни каскадной схемы, а во втором случае — ρ_{21}, который связывает подуровни нижнего уровня оптического перехода. В новосибирской научной школе эти явления, как и любые другие явления, основанные на появлении недиагонального элемента матрицы плотности при взаимодействии с двумя световыми полями, объединяются термином нелинейный интерференционный эффект.

Нестационарная нелинейная лазерная спектроскопия. Оптические уравнения Блоха.

Уравнения Блоха были перенесены в оптику из теории ядерного магнитного резонанса (ЯМР).

Уравнения Блоха удобны для качественного "на пальцах" рассмотрения нестационарных оптических явлений в двухуровневой среде.

Рассмотрим уравнения для матрицы плотности двухуровневой системы в приближении вращающейся волны:

$$\begin{cases} \dot{\rho}_{11} + \gamma_1\rho_{11} = \gamma_1\rho_{11}^0 - i\dfrac{R}{2}\left(\tilde{\rho}_{12} - \tilde{\rho}_{21}\right) \\ \dot{\rho}_{22} + \gamma_2\rho_{22} = \gamma_2\rho_{22}^0 + i\dfrac{R}{2}\left(\tilde{\rho}_{12} - \tilde{\rho}_{21}\right). \\ \dot{\tilde{\rho}}_{21} - i\Omega\tilde{\rho}_{21} + \Gamma\tilde{\rho}_{21} = i\dfrac{R}{2}\left(\rho_{11} - \rho_{22}\right) \end{cases}$$

Пронумеруем эти уравнения, как уравнения (1), (2), (3).

Напомним, что в этих уравнениях $\Omega = \omega - kV_z - \omega_{21}$ — расстройка частоты светового поля относительно частоты перехода в системе отсчета молекулы; $\tilde{\rho}_{21}$ — амплитуда недиагонального элемента матрицы плотности, а сам недиагональный элемент связан с амплитудой соотношением $\rho_{21} = \tilde{\rho}_{21}e^{-i\varphi}$, где $\varphi = \omega t - kz + \varphi_0 = \omega' t + \varphi_0$ — фаза световой волны; $\tilde{\rho}_{12} = \tilde{\rho}_{21}^*$; $R = \dfrac{p\mathcal{E}_0}{\hbar}$ — частота Раби; $p = \int \psi_1^*\left(\vec{p},\vec{e}\right)\psi_2 \cdot d\vec{r}$ — недиагональный матричный элемент проекции дипольного момента перехода на единичный вектор поляризации световой волны; $\vec{p} = \sum_i q_i\vec{r}_i$ — дипольный момент. Напомним, что в системе отсчета молекулы частота света сдвинута эффектом Доплера $\omega' = \omega - kV_z$.

От двух вещественных переменных ρ_{11}, ρ_{22} и одной комплексной переменной $\tilde{\rho}_{21}$ перейдем к 4-м новым вещественным переменным: u, v, w, s.

Новые переменные определяются следующими уравнениями:

$$\begin{cases} 2\tilde{\rho}_{21} = u - iv \\ \rho_{22} - \rho_{11} = w. \\ \rho_{11} + \rho_{22} = s \end{cases}$$

Будем считать, что новые переменные, как и старые не содержат сомножителя $N_{0_{V_z}}$.

Дифференциальные уравнения для новых переменных получаются из уравнений (1), (2), (3) для элементов матрицы плотности путем выполнения следующих операций:

$$\begin{cases} 2\operatorname{Re}(3) \\ -2\operatorname{Im}(3) \\ (2)-(1) \\ (1)+(2) \end{cases} \quad \Rightarrow \quad \begin{cases} \dot{u}+\Gamma u-\Omega v=0 \\ \dot{v}+\Gamma v+\Omega u-Rw=0 \\ \dot{w}+\gamma w+\gamma' s+Rv=\gamma w^0 \\ \dot{s}+\gamma s+\gamma' w=\gamma s^0 \end{cases}$$

, где введены следующие обозначения:

$$\begin{cases} \gamma \equiv \dfrac{\gamma_1+\gamma_2}{2} \\ \gamma' \equiv \dfrac{\gamma_2-\gamma_1}{2} \\ \gamma w^0 \equiv \gamma_2\rho_{22}^0-\gamma_1\rho_{11}^0 \\ \gamma s^0 \equiv \gamma_1\rho_{11}^0+\gamma_2\rho_{22}^0 \end{cases}.$$

Далее введем упрощающие предположения, которые позволят дать качественную наглядную интерпретацию нестационарных оптических явлений.

Предположим:

$$\begin{cases} \Gamma = \dfrac{\gamma_1+\gamma_2}{2} \\ \gamma_1=\gamma_2 \end{cases}.$$

Эти предположения более или менее справедливы для ИК молекулярных спектров. Обоснуем эти предположения.

С одной стороны $\Gamma = \dfrac{\gamma_1+\gamma_2}{2}+\Gamma_{\text{дефазировки}}+\Gamma_{\text{деориентации}}$. А с другой стороны, структура энергетических уровней молекул очень сложная и богатая, поэтому практически любое столкновение молекулы переводит ее с одного уровня энергии на другой. То есть тушащие столкновения происходят для молекул в отличие от атомов гораздо чаще, чем дефазирующие и деориентирующие столкновения. Тогда дефазирующими и деориентирующими столкновениями молекул можно пренебречь, и $\Gamma = \dfrac{\gamma_1+\gamma_2}{2}$.

Кроме того, для ИК линий спектра верхний и нижний уровни близки по энергии, поэтому часто оказывается, что $\gamma_1 \approx \gamma_2$.

С учетом принятых приближений получим:

$$\begin{cases} \gamma_1=\gamma_2=\Gamma\equiv\gamma \\ \gamma'=0 \end{cases}.$$

Тогда дифференциальные уравнения для 4-х новых переменных примут следующий вид:

$$\begin{cases} \dot{u} + \gamma u - \Omega v = 0 \\ \dot{v} + \gamma v + \Omega u - R w = 0 \\ \dot{w} + \gamma w + R v = \gamma w^0 \\ \dot{s} + \gamma s = \gamma s^0 \end{cases}.$$

Заметим, что 4-е уравнение для переменной s оказывается несвязанным ни с другими уравнениями, ни с другими переменными.

Это уравнение

$$\dot{s} + \gamma s = \gamma s^0$$

имеет следующее решение:

$$s(t) = s^0 + A e^{-\gamma t}.$$

Следовательно, после включения накачки переменная $s(t)$ стремится к значению s^0 независимо от наличия света.

Нас интересует реакция среды на быстрые включения и выключения светового поля. В таком случае можно считать, что накачка была включена задолго до рассматриваемых манипуляций с амплитудой светового поля, и переменная s успела прийти к стационарному значению s^0:

$$s(t) = s^0 = const.$$

Для остальных трех переменных получаем систему следующих дифференциальных уравнений:

$$\begin{cases} \dot{u} + \gamma u = \Omega v \\ \dot{v} + \gamma v = R w - \Omega u \\ \dot{w} + \gamma w = -R v + \gamma w^0 \end{cases}.$$

Рассмотрим некоторое абстрактное трехмерное пространство и введем в рассмотрение в этом пространстве два вектора:

$\vec{B} \equiv \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix}$ — вектор Блоха,

$$\vec{R}_\Omega = \begin{pmatrix} R \\ 0 \\ \Omega \end{pmatrix}.$$

Рассмотрим векторное произведение

$$\left[\vec{B},\vec{R}_{\Omega}\right]=\begin{vmatrix}\vec{i} & \vec{j} & \vec{k}\\ B_1 & B_2 & B_3\\ R & 0 & \Omega\end{vmatrix}=\begin{vmatrix}\vec{i} & \vec{j} & \vec{k}\\ u & v & w\\ R & 0 & \Omega\end{vmatrix}=v\Omega\vec{i}+\left(wR-u\Omega\right)\vec{j}-vR\vec{k}.$$

Сравним правую часть полученного равенства с правой частью системы уравнений $\begin{cases}\dot{u}+\gamma u=\Omega v\\ \dot{v}+\gamma v=Rw-\Omega u\\ \dot{w}+\gamma w=-Rv+\gamma w^0\end{cases}$ и получим:

$\dot{\vec{B}}+\gamma\vec{B}=\left[\vec{B},\vec{R}_{\Omega}\right]+\vec{W}^0$ — дифференциальное уравнение для вектора Блоха. Здесь введено обозначение:

$$\vec{W}^0\equiv\begin{pmatrix}0\\0\\\gamma w^0\end{pmatrix}\equiv\begin{pmatrix}0\\0\\\gamma_2\rho_{22}^0-\gamma_1\rho_{11}^0\end{pmatrix}$$ — накачка разности заселенностей.

<u>Физический смысл компонент вектора Блоха.</u>

Начнем с третьей компоненты вектора Блоха:

$B_3\equiv w\equiv\rho_{22}-\rho_{11}$ — разность вероятностей обнаружить молекулу на верхнем и на нижнем уровнях энергии.

Если вектор Блоха направлен вверх $B_3=1$, то молекула находится на верхнем уровне энергии. Если вектор Блоха направлен вниз $B_3=-1$, то молекула находится на нижнем уровне энергии. То есть вертикальная проекция вектора Блоха показывает, в какой мере молекула находится на верхнем или на нижнем уровне энергии.

В традиционном определении вектора Блоха в отличие от нашего определения есть еще сомножитель $N_{0_{V_z}}$.

Рассмотрим третью компоненту вектора Блоха в традиционном определении:

$N_{0_{V_z}}B_3=N_{0_{V_z}}w=N_{0_{V_z}}\left(\rho_{22}-\rho_{11}\right)=N_{2_{V_z}}-N_{1_{V_z}}$ — это распределение разности заселенностей по лучевой скорости молекул.

Для краткости говорят, что третья компонента вектора Блоха — это инверсия среды в том смысле, что $B_3=+1$ соответствует инвертированной среде, а $B_3=-1$ соответствует нормальному состоянию среды, когда заселенность нижнего уровня больше заселенности верхнего уровня (точнее при условии $B_3=-1$ заселенность верхнего уровня равна нулю).

Рассмотрим теперь две первых компоненты вектора Блоха $\begin{cases} B_1 = u \\ B_2 = v \end{cases}$. Эти компоненты имеют два наглядных физических смысла.

Первый смысл связан с поляризацией среды. Рассмотрим распределение поляризации по лучевой скорости молекул:

$$P_{V_z} = N_{0_{V_z}} \cdot \langle p(V_z) \rangle = N_{0_{V_z}} \cdot Sp\left(\hat{\rho}(V_z)\,\hat{p}\right) =$$

$$= N_{0_{V_z}} \cdot Sp\left(\begin{pmatrix} \rho_{11}(V_z) & \rho_{12}(V_z) \\ \rho_{21}(V_z) & \rho_{22}(V_z) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 0 & p \\ p & 0 \end{pmatrix}\right) = N_{0_{V_z}} \cdot p \cdot \left(\rho_{12}(V_z) + \rho_{21}(V_z)\right) =$$

$$= N_{0_{V_z}}\, p \cdot 2\,\mathrm{Re}\left(\rho_{21}(V_z)\right) = N_{0_{V_z}}\, p \cdot 2\,\mathrm{Re}\left(\tilde{\rho}_{21}(V_z)\, e^{-i\varphi}\right) =$$

$$= p\, N_{0_{V_z}} \left(2\,\mathrm{Re}(\tilde{\rho}_{21}) \cdot \cos(\varphi) + 2\,\mathrm{Im}(\tilde{\rho}_{21}) \cdot \sin(\varphi)\right) =$$

$$= p\, N_{0_{V_z}} \left(u \cdot \cos(\varphi) - v \cdot \sin(\varphi)\right),$$ где φ — фаза световой волны.

Две горизонтальные проекции вектора Блоха u и v можно выразить через горизонтальную составляющую вектора Блоха $B_\perp = \sqrt{u^2 + v^2}$:

$$\begin{cases} u = B_\perp \cos(\alpha) \\ v = B_\perp \sin(\alpha) \end{cases}.$$

Здесь α — угол поворота составляющей вектора Блоха в горизонтальной плоскости $\vec{B}_\perp$ относительно первой оси в абстрактном пространстве вектора Блоха.

Тогда

$$P_{V_z} = pN_{0_{V_z}} \left(u \cdot \cos(\varphi) - v \cdot \sin(\varphi)\right) =$$

$$= pN_{0_{V_z}} B_\perp \left(\cos(\alpha) \cdot \cos(\varphi) - \sin(\alpha) \cdot \sin(\varphi)\right) =$$

$$= pN_{0_{V_z}} B_\perp \cos(\alpha + \varphi). \qquad =>$$

$$P_{V_z} = pN_{0_{V_z}} B_\perp \cos(\alpha + \varphi)$$

Из этого равенства следует 1-й смысл первых двух компонент вектора Блоха.

Длина составляющей вектора Блоха в плоскости (1, 2) $B_\perp$ определяет амплитуду поляризации среды, а угол поворота α вектора Блоха в плоскости (1, 2) равен фазовому сдвигу α поляризации относительно фазы световой волны φ.

Второй смысл двух первых компонент вектора Блоха определяется их связью с коэффициентом поглощения среды и показателем преломления среды.

Из 4-х следующих систем

$$\begin{cases} n - n_0 = \dfrac{2\pi}{n_0}\chi' \\ \aleph = \dfrac{4\pi\omega}{n_0 c}\chi'' \end{cases} \quad \begin{cases} P_c = \chi'\mathcal{E}_0 \\ P_s = \chi''\mathcal{E}_0 \end{cases} \qquad \begin{cases} P_c = \int\limits_{-\infty}^{+\infty} P_{c_{V_z}}\, dV_z \\ P_s = \int\limits_{-\infty}^{+\infty} P_{s_{V_z}}\, dV_z \end{cases} \quad \begin{cases} P_{c_{V_z}} = pN_{0_{V_z}} u(V_z) \\ P_{s_{V_z}} = -pN_{0_{V_z}} v(V_z) \end{cases}$$

получаем

$$\begin{cases} n - n_0 = \dfrac{2\pi}{n_0} \cdot p \cdot \int\limits_{-\infty}^{+\infty} \dfrac{u(V_z)}{\mathcal{E}_0} N_{0_{V_z}}\, dV_z \\ \aleph = -\dfrac{4\pi\omega}{n_0 c} \cdot p \cdot \int\limits_{-\infty}^{+\infty} \dfrac{v(V_z)}{\mathcal{E}_0} N_{0_{V_z}}\, dV_z \end{cases}.$$

Отсюда следует второй смысл двух первых компонент вектора Блоха.
Компонента $B_1 = u$ определяет добавку к показателю преломления среды.
Компонента $B_2 = v$ определяет усиление среды $(-\aleph)$.

Качественный вид решений уравнений Блоха.

Сначала максимально упростим уравнения Блоха и рассмотрим решения этих упрощенных уравнений. Затем поэтапно будем возвращаться к рассмотрению настоящих уравнений Блоха, и будем следить, как при этом изменяются их решения.

Для начала рассмотрим уравнения Блоха

$$\dot{\vec{B}} + \gamma\vec{B} = \left[\vec{B}, \vec{R}_\Omega\right] + \vec{W}^0$$

без накачки $\vec{W}^0 = 0$ и без затухания $\gamma = 0$. Тогда уравнения Блоха примут следующий вид:

$$\dot{\vec{B}} = \left[\vec{B}, \vec{R}_\Omega\right],$$

где $\vec{R}_\Omega = \begin{pmatrix} R \\ 0 \\ \Omega \end{pmatrix}$, $R = \dfrac{p\mathcal{E}_0}{\hbar}$ — частота Раби, $\Omega = \omega' - \omega_{21}$ — расстройка частоты светового поля ω' в системе отсчета молекулы относительно частоты перехода ω_{21}.

Сравним уравнения Блоха без накачки и затухания с уравнением вращения твердого тела вокруг фиксированной оси.

Если начало координат расположено на оси вращения, то

$\vec{V} = \left[\vec{\omega}, \vec{r}\right]$, где $\vec{V}$ — скорость произвольной точки твердого тела с радиус-вектором $\vec{r}$ при вращении твердого тела с угловой скоростью $\vec{\omega}$.

Скорость — это производная от радиус-вектора по времени, тогда

$$\dot{\vec{r}} = [\vec{\omega}, \vec{r}].$$

Сравним последнее уравнение с уравнением для вектора Блоха

$$\dot{\vec{B}} = [-\vec{R}_\Omega, \vec{B}].$$

В результате сравнения приходим к выводу, что вектор Блоха $\vec{B}$ вращается с угловой скоростью $\left(-\vec{R}_\Omega\right)$. Другими словами можно сказать, что вектор Блоха вращается вокруг вектора $\vec{R}_\Omega$ в левую сторону.

Рассмотрим это вращение.

Пусть в начальный момент времени молекула находилась на уровне 1, тогда

$$\rho_{11} = 1 \qquad => \qquad \rho_{22} = 0 \qquad =>$$

$$\rho_{21} \equiv \left\langle \overset{*}{a_1} a_2 e^{-i\omega_{21}t} \right\rangle_{по\ молекулам} = 0 \quad =>$$

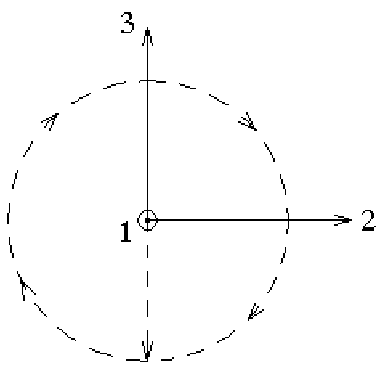
$$\begin{cases} u \equiv 2\,\mathrm{Re}\,\tilde{\rho}_{21} = 0 \\ v \equiv -2\,\mathrm{Im}\,\tilde{\rho}_{21} = 0 \\ w \equiv \rho_{22} - \rho_{11} = -1 \end{cases} \qquad => \qquad \vec{B}(0) = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ -1 \end{pmatrix}$$

— вектор Блоха смотрит вниз в начальный момент времени.

Пусть еще и расстройка частоты света в системе отсчета молекулы относительно частоты перехода равна нулю $\Omega = 0$. Тогда

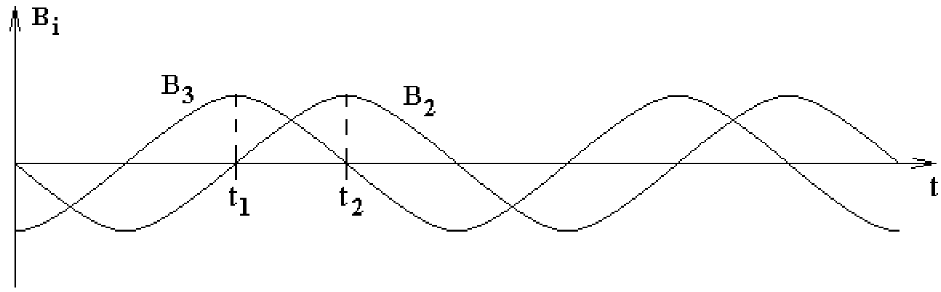
$$\vec{R}_\Omega \equiv \begin{pmatrix} R \\ 0 \\ \Omega \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} R \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$$ — вектор, вокруг которого вектор Блоха вращается в левую сторону, направлен вдоль оси 1.

Тогда конец вектора Блоха $\vec{B}$ движется по окружности в плоскости 2,3, как это показано на рисунке:



.

Рассмотрим соответствующее этому вращению изменение во времени второй и третьей компонент вектора Блоха B_2, B_3.



Оказывается, что наличие инверсии заселенностей среды B_3 вовсе не означает, что среда имеет усиление B_2. Так например, в момент времени t_1 инверсия есть $B_3 = 1$, а усиления нет $B_2 = 0$. И, наоборот, в момент времени t_2 инверсии нет $B_3 = 0$, а усиление максимально $B_2 = 1$.

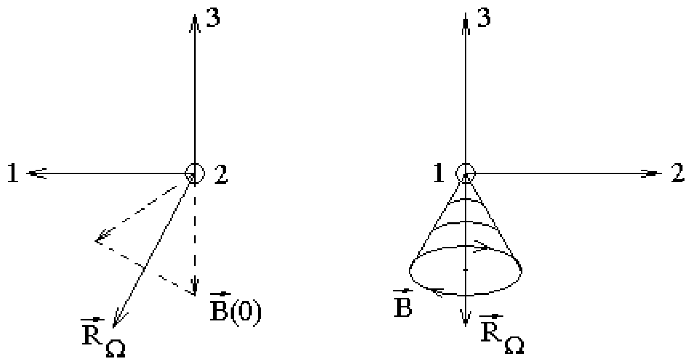
Поясним, почему так происходит. В момент времени t_2 инверсия быстрее всего убывает, то есть молекулы переходят из верхнего состояния в нижнее состояние. Энергия, которую теряют молекулы, расходуется на усиление света. Поэтому усиление максимально, когда инверсия быстрее всего убывает, а не когда инверсия максимальна.

Частота осцилляций инверсии и усиления R_Ω равна частоте Раби $R_\Omega = R = \dfrac{p\mathcal{E}_0}{\hbar}$. С этой частотой молекула переходит с нижнего уровня энергии на верхний уровень и обратно.

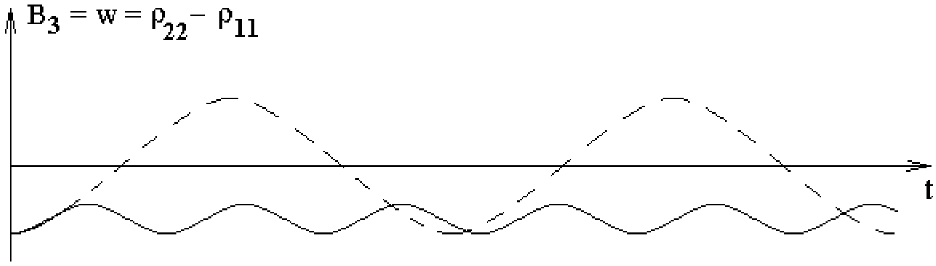
Пусть теперь расстройка Ω отлична от нуля. Тогда

$$\vec{R}_\Omega = \begin{pmatrix} R \\ 0 \\ \Omega \end{pmatrix}.$$

И пусть для определенности расстройка отрицательная $\Omega < 0$. Изобразим вектор $\vec{R}_\Omega$ и покажем, как вокруг него вращается вектор Блоха.



Рассмотрим соответствующее этому вращению вектора Блоха изменение во времени инверсии среды — третьей компоненты вектора Блоха.



Здесь пунктирная линия — изменение инверсии при нулевой расстройке частоты света относительно частоты перехода $\Omega = 0$, сплошная линия — отличная от нуля расстройка $\Omega \neq 0$. При $\Omega \neq 0$ частота осцилляций становится больше $\left|R_\Omega\right| = \sqrt{R^2 + \Omega^2}$, а амплитуда — меньше.

При резком включении светового поля возникают осцилляции инверсии среды с частотой Раби. Осцилляции постепенно затухают.

Рассмотрим теперь уравнения Блоха с учетом затухания $\gamma \neq 0$:

$$\dot{\vec{B}} + \gamma \vec{B} = \left[\vec{B}, \vec{R}_\Omega\right].$$

При вращении твердого тела $\vec{V} = \left[\vec{\omega}, \vec{r}\right]$, где $\vec{V}$ — скорость любой точки, которая неподвижна относительно тела $\vec{V}' = 0$. Если относительно твердого тела точка движется $\vec{V}' \neq 0$, то в неподвижной системе отсчета скорость относительно твердого тела $\vec{V}'$ и скорость точки самого твердого тела $\left[\vec{\omega}, \vec{r}\right]$ складываются:

$$\vec{V} = \vec{V}' + \left[\vec{\omega}, \vec{r}\right] \qquad => \qquad \frac{d\vec{r}}{dt} = \frac{d'\vec{r}}{dt} + \left[\vec{\omega}, \vec{r}\right],$$

где $\frac{d'\vec{r}}{dt}$ — производная по времени во вращающейся системе отсчета.

Аналогично связаны друг с другом производные по времени от любого вектора $\vec{A}$ в неподвижной и вращающейся системах отсчета:

$$\frac{d\vec{A}}{dt} = \frac{d'\vec{A}}{dt} + \left[\vec{\omega}, \vec{A}\right].$$

Обсудим, чем отличаются производные по времени в неподвижной и вращающейся системах отсчета: $\frac{d\vec{A}}{dt}$ и $\frac{d'\vec{A}}{dt}$.

Вектор $\frac{d\vec{A}}{dt}$ в проекциях на неподвижные оси (оси координат неподвижной системы отсчета) имеет три компоненты равные производным по времени от соответствующих проекций: $\frac{d\vec{A}}{dt} = \begin{pmatrix} \dot{A}_x \\ \dot{A}_y \\ \dot{A}_z \end{pmatrix}$.

Аналогично вектор $\frac{d'\vec{A}}{dt}$ в проекциях на вращающиеся оси координат имеет вид $\frac{d'\vec{A}}{dt} = \begin{pmatrix} \dot{A}_{x'} \\ \dot{A}_{y'} \\ \dot{A}_{z'} \end{pmatrix}$ вектора, состоящего из трех компонент, равных производным по времени от соответствующих проекций на вращающиеся оси координат.

Производную по времени во вращающейся системе отсчета от произвольного вектора $\vec{A}$

$$\frac{d'\vec{A}}{dt} = \frac{d\vec{A}}{dt} - \left[\vec{\omega}, \vec{A}\right]$$

сравним с двумя первыми слагаемыми уравнения для вектора Блоха, переписанного в следующей форме:

$$\dot{\vec{B}} - \left[-\vec{R}_\Omega, \vec{B}\right] + \gamma\vec{B} = 0.$$

Из сравнения следует, что два первых слагаемых можно представить, как производную от вектора Блоха по времени в системе отсчета, которая вращается с угловой скоростью $\left(-\vec{R}_\Omega\right)$:

$$\dot{\vec{B}} - \left[-\vec{R}_\Omega, \vec{B}\right] = \frac{d'\vec{B}}{dt} \equiv \vec{B}'.$$

Тогда в этой вращающейся системе отсчета уравнение для вектора Блоха примет вид:

$$\vec{B}' + \gamma\vec{B} = 0.$$

Решение этого уравнения экспоненциально затухает во времени:

$$\vec{B}_{зат}(t) = \vec{B}(0) \cdot e^{-\gamma t}.$$

Тогда решение для вектора Блоха в неподвижной системе отсчета — это вектор, вращающийся с угловой скоростью $\left(-\vec{R}_\Omega\right)$ и одновременно укорачивающийся пропорционально экспоненте $e^{-\gamma t}$.

Учтем теперь и накачку $\vec{W}^0$ в уравнении для вектора Блоха:

$$\dot{\vec{B}}+\gamma\vec{B}-\left[\vec{B},\vec{R}_\Omega\right]=\vec{W}^0.$$

Общее решение этого неоднородного уравнения равно сумме общего решения однородного уравнения и частного решения неоднородного уравнения.

Общее решение однородного уравнения мы только что обсудили. Это решение уравнения Блоха без накачки.

Ищем частное решение неоднородного уравнения в виде векторной константы. Это так называемое стационарное решение:

$$\vec{B}_{стац}(t)=\overrightarrow{const} \qquad => \qquad \dot{\vec{B}}_{стац}=0.$$

Тогда уравнение для стационарной части вектора Блоха примет следующий вид:

$$\gamma\vec{B}_{стац}=\left[\vec{B}_{стац},\vec{R}_\Omega\right]+\vec{W}^0.$$

Это три линейных уравнения для трех неизвестных проекций вектора Блоха. Три линейных уравнения с тремя неизвестными можно решить в общем виде:

$$\begin{cases} u_{стац}=\dfrac{R\Omega w^0}{\gamma^2+R^2+\Omega^2} \\ v_{стац}=\dfrac{\gamma R w^0}{\gamma^2+R^2+\Omega^2} \\ w_{стац}=\dfrac{\left(\gamma^2+\Omega^2\right)w^0}{\gamma^2+R^2+\Omega^2} \end{cases}, \text{ где } \vec{W}^0\equiv\begin{pmatrix}0\\0\\\gamma w^0\end{pmatrix}\equiv\begin{pmatrix}0\\0\\\gamma_2\rho_{22}^0-\gamma_1\rho_{11}^0\end{pmatrix}, \text{ где } \gamma_1=\gamma_2.$$

Общее решение неоднородного уравнения для вектора Блоха имеет решение в следующем виде:

$$\vec{B}(t)=\vec{B}_{стац}+\vec{B}_{зат}(t).$$