## <u>Динамический Штарк-эффект или эффект Штарка в поле световой волны</u> (одетый атом).

Динамический эффект Штарка состоит в том, что уровни энергии атома или молекулы расщепляются и сдвигаются в световом поле. Проявляется расщепление уровней в том, что атом, находясь в сильном световом поле, имеет для еще одного пробного светового поля три линии поглощения вместо одной.

Атом находится в двух световых полях в общем случае разной частоты. При этом два световых поля складываются то синфазно, то противофазно. В результате атом оказывается в световом поле, амплитуда которого испытывает биения на разностной частоте двух полей. То есть, атом находится в нестационарном световом поле.

Покажем, что атом в нестационарном световом поле имеет три линии поглощения вместо одной линии.

Проведем рассмотрение с помощью вектора Блоха.

Две первых компоненты вектора Блоха связаны с поляризацией среды:

$$P_{V_z} = pN_{0_{V_z}} \left( B_1(V_z) \cdot \cos(\varphi) - B_2(V_z) \cdot \sin(\varphi) \right),$$
где

 $\varphi = \omega' t + \varphi_0 = (\omega - kV_z)t + \varphi_0$  — фаза световой волны в системе отсчета молекулы (вообще то, фаза — скаляр по группе Лоренца).

Рассмотрим вектор Блоха без затухания и накачки:  $\vec{B} = \begin{bmatrix} -\vec{R}_{\Omega}, \vec{B} \end{bmatrix}$ . Вектор Блоха  $\vec{B}$  вращается вокруг вектора  $\begin{pmatrix} -\vec{R}_{\Omega} \end{pmatrix}$ , где  $\vec{R}_{\Omega} = \begin{pmatrix} R \\ 0 \\ \Omega \end{pmatrix}$ .

Тогда первые две компоненты  $B_1$  и  $B_2$  вектора Блоха  $\vec{B}$ , входящие в выражение для поляризации  $P_{V_z}$ , осциллируют с частотой  $R_{\Omega} = \sqrt{R^2 + \Omega^2}$ .

Рассмотрим вращение вектора Блоха для атомов (или молекул), которые в начальный момент времени находятся на нижнем уровне энергии. Тогда в нулевой момент времени вероятность обнаружить атом на нижнем уровне энергии равна единице  $\rho_{11}(0) = 1$ , и вектор Блоха в нулевой момент времени

направлен вертикально вниз  $\vec{B}(0) = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ -1 \end{pmatrix}$ .

Вращение вектора Блоха вокруг вектора  $\vec{R}_{\Omega}$  в левую сторону изображено на нижеследующем рисунке для случая  $\Omega < 0$ :

$$I = \int_{\overline{R}_{\Omega}} \int_{\overline{B}(0)} \int_{\overline{B}(0)} \int_{\overline{R}_{\Omega}} \int$$

Следовательно, поляризация  $P_{V_z}$  состоит из трех слагаемых, которые осциллируют на частотах  $\omega'$ ,  $\omega' + R_{\Omega}$  и  $\omega' - R_{\Omega}$ . Здесь  $\omega' = \omega - kV_z$  — частота света в системе отсчета атома.

Поляризация — это объемная плотность дипольного момента. Осциллирующие диполи среды излучают свет на тех же трех частотах.

Пусть через такую среду проходит еще одна пробная световая волна. Если частота пробной волны совпадает с одной из трех частот излучения диполей среды, то волна излученная диполями интерферирует с пробной волной.

В результате интерференции изменяется амплитуда пробной волны. То есть пробная волна поглощается или усиливается средой.

Следовательно, среда имеет три линии поглощения для пробной световой волны с частотами  $\omega'$ ,  $\omega' + R_{\Omega}$  и  $\omega' - R_{\Omega}$ . В этом и состоит динамический эффект Штарка.

Рассуждения проведены для случая  $\Omega < 0$ , когда получаем  $B_{10} > 0$  и  $B_{20} > 0$ . Если  $\Omega > 0$ , то  $B_{10} < 0$ , но  $B_{20} > 0$ .

Для описания трех линий поглощения нужно не менее 4-х уровней энергии. Схема уровней энергии приведена ниже на рисунке.



Чтобы линий поглощения было только три необходимо, чтобы расщепление двух верхних подуровней энергии было бы равно расщеплению двух нижних подуровней.

Из рисунка видно, что энергии уровней связаны с частотами переходов следующими соотношениями:

$$\begin{cases} E_{2}^{"} - E_{1}^{"} = \hbar \omega' \\ E_{2}^{'} - E_{1}^{"} = \hbar (\omega' - R_{\Omega}). \\ E_{2}^{"} - E_{1}^{'} = \hbar (\omega' + R_{\Omega}) \end{cases}$$

Уравнение для четвертого возможного перехода не является линейно независимым по отношению к трем предыдущим уравнениям.

В качестве четвертого уравнения для 4-х неизвестных энергий потребуем из симметрии задачи сохранения центра тяжести 4-х уровней энергии:

$$\frac{E_1' + E_1'' + E_2' + E_2''}{4} = \frac{E_1 + E_2}{2}$$

Решаем систему из 4-х уравнений и получаем энергии уровней:

$$E_{1}' = E_{1} - \frac{\hbar\Omega}{2} - \frac{\hbar R_{\Omega}}{2}$$

$$E_{1}'' = E_{1} - \frac{\hbar\Omega}{2} + \frac{\hbar R_{\Omega}}{2}$$

$$E_{2}' = E_{2} + \frac{\hbar\Omega}{2} - \frac{\hbar R_{\Omega}}{2}$$
, где
$$\begin{cases} \Omega = \omega - kV_{z} - \omega_{21} = \omega' - \omega_{21}$$

$$R_{\Omega} = \sqrt{R^{2} + \Omega^{2}}$$

$$R_{\Omega} = \sqrt{R^{2} + \Omega^{2}}$$

$$R = \frac{p \mathcal{E}_{0}}{\hbar}$$

Поведение уровней энергии в зависимости от частоты Раби R, которая пропорциональна амплитуде светового поля  $\mathcal{E}_0$ , приведено на нижеследующих рисунках.



Верхний рисунок относится к случаю положительной расстройки частоты света относительно частоты перехода  $\Omega > 0$ , а нижний рисунок — к случаю отрицательной расстройки  $\Omega < 0$ . Жирными линиями показаны исходные уровни энергии, которые были и без светового поля.

Рассмотрим подробнее верхний рисунок, где  $\Omega = \omega' - \omega_{21} > 0$ .

Левая область графиков верхнего рисунка  $R < |\Omega|$  — это область слабого поля или нерезонансная область.

Правая область графиков  $R > |\Omega|$  верхнего рисунка — это область сильного поля или резонансная область.

Заметим, что исходные уровни энергии  $E_1^{''}$ и  $E_2^{'}$  в случае  $\Omega > 0$  приближаются друг к другу при увеличении светового поля. Если же  $\Omega < 0$ , то исходными уровнями будут уровни  $E_1^{'}$ и  $E_2^{''}$ , и они будут удаляться друг от друга с увеличением поля световой волны. То есть концы вертикальной стрелки энергии светового поля отталкивают от себя уровни энергии перехода. Если вертикальная стрелка светового поля длиннее перехода между уровнями, то уровни сближаются, если короче — разбегаются.

Обсудим теперь правила отбора.

Обозначим угловой радиус при вершине конуса за  $\alpha$ , тогда  $tg(\alpha) = \left|\frac{R}{\Omega}\right|$ , как это видно из нижеследующего рисунка.



Радиус в основании конуса равен  $B_{20}$ .



$$B_{20} = B(0) \cdot \sin(\alpha) = tg(\alpha) \cdot \cos(\alpha) = \frac{tg(\alpha)}{\sqrt{1 + tg^2(\alpha)}} = \frac{\frac{R}{|\Omega|}}{\sqrt{1 + \frac{R^2}{\Omega^2}}} = \frac{R}{\sqrt{R^2 + \Omega^2}}$$

, где  $B_{10} = B_{20} \cos(\alpha)$ , что видно из рисунка.

Тогда

$$B_{10} = B_{20}\cos(\alpha) = B_{20}\frac{1}{\sqrt{1 + tg^2(\alpha)}} = \frac{R}{\sqrt{R^2 + \Omega^2}} \cdot \frac{1}{\sqrt{1 + \frac{R^2}{\Omega^2}}} = -\frac{R\Omega}{R^2 + \Omega^2}$$

Здесь минус появляется, так как на рисунке  $\Omega < 0$ , а величина  $B_{10} > 0$ . Формулы справедливы и при условии  $\Omega > 0$ . В дальнейшем удобнее будет считать, что  $\Omega > 0$ .

Напомним, что поляризация содержит колебания на трех частотах:

$$\begin{cases} P_{V_{z}} = pN_{0_{V_{z}}}B_{10}\cos(\omega't) - pN_{0_{V_{z}}}\frac{B_{10} + B_{20}}{2}\cos((\omega' + R_{\Omega})t) + pN_{0_{V_{z}}}\frac{B_{20} - B_{10}}{2}\cos((\omega' - R_{\Omega})t) \\ B_{10} = -\frac{R\Omega}{R^{2} + \Omega^{2}} \\ B_{20} = \frac{R}{\sqrt{R^{2} + \Omega^{2}}} \\ B_{20} = \frac{R}{\sqrt{R^{2} + \Omega^{2}}} \\ \end{bmatrix} \\ \text{ Тогда амплитуды на частотах } \begin{cases} \omega' \\ \omega' + R_{\Omega} \\ \omega' - R_{\Omega} \end{cases} \text{ пропорциональны величинам} \\ \frac{\beta_{10}}{2} \frac{B_{10} + B_{20}}{2} \\ \frac{B_{10} + B_{20}}{2} \\ \frac{B_{20} - B_{10}}{2} \end{cases} \text{ или пропорциональны } \begin{cases} -\frac{R\Omega}{R^{2} + \Omega^{2}} \\ \frac{1}{2}\frac{R\Omega}{R^{2} + \Omega^{2}} - \frac{1}{2}\frac{R}{\sqrt{R^{2} + \Omega^{2}}} \\ \frac{1}{2}\frac{R\Omega}{R^{2} + \Omega^{2}} + \frac{1}{2}\frac{R}{\sqrt{R^{2} + \Omega^{2}}} \end{cases} \end{cases}$$

Чтобы было удобнее проводить анализ формул, введем безразмерную амплитуду светового поля  $\xi \equiv \frac{R}{\Omega}$  или частоту Раби, отнесенную к частоте расстройки светового поля  $\Omega = \omega' - \omega_{21}$ , и для определенности будем считать, что  $\Omega > 0$ . Тогда амплитуды поляризации на трех частотах пропорциональны величинам:

$$\begin{aligned} & -\frac{\xi}{1+\xi^2} \\ & \frac{1}{2}\frac{\xi}{1+\xi^2} - \frac{1}{2}\frac{|\xi|}{\sqrt{1+\xi^2}} \\ & \frac{1}{2}\frac{\xi}{1+\xi^2} + \frac{1}{2}\frac{|\xi|}{\sqrt{1+\xi^2}} \end{aligned}$$

Чтобы избавиться от модулей перейдем к рассмотрению трех частот другом в виде:

$$\begin{cases} \omega' \longrightarrow \omega' \\ \omega' + R_{\Omega} = \omega'^2 + \sqrt{R^2 + \Omega^2} \longrightarrow \omega' + \Omega \sqrt{1 + \frac{R^2}{\Omega^2}} \\ \omega' - R_{\Omega} = \omega'^2 - \sqrt{R^2 + \Omega^2} \longrightarrow \omega' - \Omega \sqrt{1 + \frac{R^2}{\Omega^2}} \\ \end{cases}$$
с амплитудами поляризации 
$$\begin{cases} -\frac{\xi}{1 + \xi^2} \\ \frac{1}{2}\frac{\xi}{1 + \xi^2} - \frac{1}{2}\frac{\xi}{\sqrt{1 + \xi^2}} \\ \frac{1}{2}\frac{\xi}{1 + \xi^2} + \frac{1}{2}\frac{\xi}{\sqrt{1 + \xi^2}} \end{cases}$$
на этих частотах.

Рассмотрим, что происходит в слабом световом поле при  $\xi \to 0$ .

В этом случае все три амплитуды стремятся к нулю. Разделим все три амплитуды на безразмерную амплитуду поля  $\xi$  и получим коэффициенты пропорциональные амплитудам колебаний поляризации, но такие, что некоторые коэффициенты при этом не будут стремиться к нулю при  $\xi \rightarrow 0$ .

Коэффициенты будут равны 
$$\begin{cases} -\frac{1}{1+\xi^2} \\ \frac{1}{2}\frac{1}{1+\xi^2} - \frac{1}{2}\frac{1}{\sqrt{1+\xi^2}} & \longrightarrow \\ \frac{1}{2}\frac{1}{1+\xi^2} + \frac{1}{2}\frac{1}{\sqrt{1+\xi^2}} \\ \frac{1}{2}\frac{1}{1+\xi^2} + \frac{1}{2}\frac{1}{\sqrt{1+\xi^2}} \end{cases}$$

То есть правила отбора оставляют разрешенными только две крайние частоты.

$$\begin{cases} \omega' \\ \omega' + \Omega \sqrt{1 + \frac{R^2}{\Omega^2}} \approx \omega' + \Omega \\ \omega' - \Omega \sqrt{1 + \frac{R^2}{\Omega^2}} \approx \omega' - \Omega \approx \omega_{21} \end{cases}$$

ſ

при  $\xi \to 0$ . Разрешенные частоты  $\omega'$  и  $\omega_{21}$ , где  $\omega' = \omega_{21} + \Omega$ .

В относительно слабом световом поле для второй пробной световой волны разрешены переходы на частоте первого светового поля  $\omega'$  и на частоте перехода  $\omega_{21}$ . Переходы на частоте  $\omega'$  удобнее рассматривать, не как переходы между новыми уровнями энергии, а как результат интерференции двух световых полей на частоте  $\omega'$  и результат взаимодействия суммарного поля со средой. То есть, в слабом световом поле переходов с частотой  $\omega'$  как бы и нет. В слабом поле для второй световой волны остаются только два исходных уровня энергии, слегка сдвинутые световым полем первой волны.

В относительно слабом световом поле можно считать, что новых уровней энергии не возникает, а старые уровни сдвигаются, как бы отталкиваясь от вертикальной стрелки с длиной равной энергии кванта света.



Рассмотрим теперь, правила отбора в сильном световом поле при  $\xi \to \infty$ .

В этом случае нет необходимости делить амплитуды на  $\xi$ , так как некоторые из них и так стремятся к ненулевой константе.

Амплитуды на частотах 
$$\begin{cases} \omega' \\ \omega' + R_{\Omega} \text{ равны} \\ \omega' - R_{\Omega} \end{cases} \begin{cases} -\frac{\xi}{1+\xi^2} \\ \frac{1}{2}\frac{\xi}{1+\xi^2} - \frac{1}{2}\frac{|\xi|}{\sqrt{1+\xi^2}} & \text{и стремятся} \\ \frac{1}{2}\frac{\xi}{1+\xi^2} + \frac{1}{2}\frac{|\xi|}{\sqrt{1+\xi^2}} \\ \frac{1}{2}\frac{\xi}{1+\xi^2} + \frac{1}{2}\frac{|\xi|}{\sqrt{1+\xi^2}} \\ \frac{1}{2}\frac{\xi}{1+\xi^2} + \frac{1}{2}\frac{|\xi|}{\sqrt{1+\xi^2}} \end{cases}$$
к величинам 
$$\begin{cases} 0 \\ -\frac{1}{2}, \text{ при } \xi \to \infty. \\ +\frac{1}{2} \end{cases}$$

В сильном световом поле  $R_{\Omega} \approx R$ .

В сильном световом поле для пробной световой волны разрешены переходы с частотами  $\omega' + R$  и  $\omega' - R$ , где  $\omega'$  — частота первого светового поля,  $\hbar R$  — расщепление уровней энергии первым световым полем. Разрешенные в сильном световом поле переходы указаны на следующем рисунке:





Рассмотрим оптическую схему:



Рассмотрим интенсивность света на выходе кюветы при быстром включении светового поля на входе в кювету.

Пусть зависимость интенсивности света на входе в кювету имеет следующий вид:



Как при этом выглядит зависимость интенсивности на выходе из кюветы, как функция времени?

Рассмотрим сначала частный случай без затухания и накачки и с нулевой расстройкой частоты светового поля относительно частоты перехода  $\Omega = 0$ .

Вектор Блоха вращается вокруг вектора  $\vec{R}_{\Omega} = \begin{pmatrix} R \\ 0 \\ \Omega \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} R \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$ :



Такому вращению соответствует следующая зависимость второй координаты вектора блоха от времени:



Эта координата отвечает за усиление света средой. Соответственно зависимость интенсивности на выходе из кюветы, как функция времени примет следующий вид:



Угловая скорость вращения вектора Блоха и циклическая частота колебаний усиления среды равна R. Тогда период колебаний интенсивности света на выходе из кюветы равен  $\frac{2\pi}{R}$ .

В случае ненулевой расстройки частоты света относительно частоты перехода  $\Omega \neq 0$ , как это уже обсуждалось ранее, амплитуда колебаний усиления среды становится меньше, а частота  $R_{\Omega} = \sqrt{R^2 + \Omega^2}$  — больше. Тогда зависимость интенсивности света на выходе из кюветы примет следующий вид:



В случае доплеровского уширения спектральной линии  $kU >> \Gamma$  расстройка  $\Omega = \omega - kV_z - \omega_{21}$  зависит от лучевой скорости молекул  $V_z$ . Синусоиды зависимости усиления света от времени при различных расстройках  $\Omega$  имеют разную частоту  $R_{\Omega}$  и поэтому быстро расходятся по фазам. Усиление света всей средой представляет собой сумму синусоид с весовыми множителями равными распределению молекул по лучевой скорости. Сумма синусоид — гармоническая функция, затухающая во времени в результате расфазировки отдельных синусоид.

В зависимости от соотношения доплеровской ширины спектральной линии 2kU и частоты Раби *R* время расфазировки  $\tau$  синусоид усиления различается. Время расфазировки  $\tau = \frac{1}{R}$  при условии  $R \ll kU$ 



и время расфазировки  $\tau = \frac{1}{kU}$  при условии  $kU \ll R$ .

Зависимость интенсивности света на выходе из кюветы от времени в случае *R* << *kU* имеет следующий вид:



Название эффекта — оптические нутации связано с аналогией с нутациями гироскопа. Ассоциация вызвана тем, что первоначально определение первых двух компонент  $B_1$  и  $B_2$  вектора Блоха несколько отличалось. Определением было равенство  $2\rho_{21} = B_1 - iB_2$  вместо более позднего определения  $2\tilde{\rho}_{21} = B_1 - iB_2$ . Величины  $\rho_{21}$  и  $\tilde{\rho}_{21}$  связаны соотношением  $\rho_{21} = \tilde{\rho}_{21}e^{-i\omega' t}$ . Тогда при первоначальном определении вектора Блоха кроме рассмотренного нами вращения вектора Блоха  $\left(-\vec{R}_{\Omega}\right)$  происходит быстрое его вращение вокруг оси 3 с частотой  $\omega'$ .

Тогда вращение  $(-\vec{R}_{\Omega})$  выглядит, как медленные колебания на фоне быстрого вращения  $\omega'$  вокруг вертикальной оси. Эти медленные колебания похожи на нутации гироскопа. Отсюда и название явления.

Количественное описание оптических нутаций.

Чтобы найти зависимость интенсивности света на выходе кюветы, как функцию времени, нужно сначала найти усиление среды, которое пропорционально второй компоненте вектора Блоха. Чтобы найти вторую компоненту решим уравнения для вектора Блоха:

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

Здесь  $\vec{R}_{\Omega} = \begin{pmatrix} R \\ 0 \\ \Omega \end{pmatrix}$  — вектор, вокруг которого в левую сторону вращается

вектор Блоха;  $\vec{B}^0 \equiv \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ B_3^0 \end{pmatrix} \equiv \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \rho_{22}^0 - \rho_{11}^0 \end{pmatrix}$  — накачка;  $\Omega = \omega - kV_z - \omega_{21}$  —

расстройка частоты светового поля в системе отсчета молекулы относительно частоты перехода,  $R = \frac{p \mathcal{E}_0}{\hbar}$  — частота Раби,  $\mathcal{E}_0$  — амплитуда светового поля,  $p = \int \psi_1^* (\vec{p}, \vec{e}) \psi_2 d\vec{r}$  — недиагональный матричный элемент проекции дипольного момента перехода на единичный вектор поляризации световой волны.

До включения светового поля решение уравнения для вектора Блоха имеет вид:

$$\vec{B}^{0} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0} \end{pmatrix}.$$

После включения светового поля в соответствии с рассмотренными ранее возможными решениями уравнений Блоха ищем решение в виде:

 $\vec{B}(t) = \vec{B}_{cmau} + \vec{A}(t) \cdot e^{-\gamma t}$ , где вектор  $\vec{B}_{cmau}$  — решение уравнения  $\gamma \vec{B}_{cmau} = \begin{bmatrix} \vec{B}_{cmau}, \vec{R}_{\Omega} \end{bmatrix} + \vec{B}^0$ , вектор  $\vec{A}(t)$  — решение уравнения  $\dot{\vec{A}} = \begin{bmatrix} \vec{A}, \vec{R}_{\Omega} \end{bmatrix}$ , вектор  $\vec{A}(t)$  вращается вокруг вектора  $\vec{R}_{\Omega}$  в левую сторону.

Сначала решим систему из трех уравнений с тремя неизвестными:

$$\begin{split} \gamma \vec{B}_{cmay} &= \left[ \vec{B}_{cmay}, \vec{R}_{\Omega} \right] + \vec{B}^{0} \text{ и получим} \\ \begin{cases} B_{1cmay} &= \frac{R\Omega \left( \rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0} \right)}{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \\ B_{2cmay} &= \frac{\gamma R \left( \rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0} \right)}{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \\ B_{3cmay} &= \frac{\left( \gamma^{2} + \Omega^{2} \right) \left( \rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0} \right)}{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \end{split}$$

Теперь решим дифференциальное уравнение  $\vec{A} = \begin{bmatrix} \vec{A}, \vec{R}_{\Omega} \end{bmatrix}$  с начальным условием для нулевого момента времени в виде:

$$\vec{B}^{0} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ (\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0}) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} B_{1cmay} \\ B_{2cmay} \\ B_{3cmay} \end{pmatrix} + \vec{A}(0) \cdot e^{-\gamma 0} \qquad => \\ \vec{A}(0) = \begin{pmatrix} -\frac{R\Omega(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0}) \\ -\frac{\gamma R(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0}) }{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \\ -\frac{\gamma R(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0}) }{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \\ \frac{R^{2}(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0}) }{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \end{pmatrix}.$$

Система уравнений  $\vec{A} = \begin{bmatrix} \vec{A}, \vec{R}_{\Omega} \end{bmatrix}$  или  $\begin{vmatrix} A_1 = A_2 \Omega \\ \cdot \\ A_2 = A_3 R - A_1 \Omega \end{cases}$  решается  $\dot{A}_3 = -A_2 R$ 

стандартным образом. Одна из переменных выражается через остальные и подставляется в оставшиеся уравнения. В результате для каждой координаты получается уравнение гармонических колебаний с частотой  $R_{\Omega}$ , что вполне естественно, так как вектор  $\vec{A}$  вращается с угловой скоростью  $-\vec{R}_{\Omega}$ .

Для каждой переменной получаем решение в виде:

 $A_i = a_i \cos(R_\Omega t) + b_i \sin(R_\Omega t)$ , где  $a_i$  и  $b_i$  — произвольные константы интегрирования, которые находятся из начальных условий и самих уравнений.

Произвольные константы интегрирования  $a_i$  можно найти из условия

$$\vec{A}(0) = \begin{pmatrix} -\frac{R\Omega(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0})}{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \\ -\frac{\gamma R(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0})}{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \\ \frac{R^{2}(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0})}{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \end{pmatrix},$$

а константы  $b_i$  из величины  $\vec{A}(0)$ , которую можно найти, подставив  $\vec{A}(0)$  в правую часть равенства

$$\begin{cases} \mathbf{A}_1 = A_2 \Omega \\ \mathbf{A}_2 = A_3 R - A_1 \Omega \\ \mathbf{A}_3 = -A_2 R \end{cases}$$

В результате получим:

$$\vec{A} = \frac{R\left(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0}\right)}{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \begin{pmatrix} -\Omega \cdot \cos\left(R_{\Omega}t\right) - \frac{\Omega\gamma}{R_{\Omega}} \cdot \sin\left(R_{\Omega}t\right) \\ -\gamma \cdot \cos\left(R_{\Omega}t\right) + R_{\Omega} \cdot \sin\left(R_{\Omega}t\right) \\ R \cdot \cos\left(R_{\Omega}t\right) + \frac{R\gamma}{R_{\Omega}} \cdot \sin\left(R_{\Omega}t\right) \end{pmatrix}.$$

Нас интересует только усиление среды, которое связано со второй компонентой вектора Блоха  $B_2 = B_{2cmay} + A_2(t) \cdot e^{-\gamma t}$ .

Тогда

$$B_2 = \frac{R\left(\rho_{22}^0 - \rho_{11}^0\right)}{\gamma^2 + R^2 + \Omega^2} \left(\gamma - \gamma \cdot \cos\left(R_{\Omega}t\right) \cdot e^{-\gamma t} + R_{\Omega} \cdot \sin\left(R_{\Omega}t\right) \cdot e^{-\gamma t}\right).$$

Как было получено при рассмотрении физического смысла компонент вектора Блоха:

$$\aleph = -\frac{4\pi\omega}{n_0 c} \cdot p \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{B_2(V_z)}{\varepsilon_0} N_{0_{V_z}} dV_z \, .$$

Подставим сюда  $B_2$  и  $R = \frac{p \in_0}{\hbar}$  и получим:

$$\aleph = -\frac{4\pi\omega p^2}{n_0 c\hbar R} \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} B_2(V_z) \cdot N_{0_{V_z}} dV_z$$
.  
При условиях  $\begin{cases} \gamma << kU \\ R << kU \end{cases}$  интеграл можно взять. Под интегралом три

слагаемых. В первом слагаемом лоренцевский контур можно рассматривать, как дельта-функцию Дирака. Интеграл от второго слагаемого гораздо меньше интеграла от третьего слагаемого и это второе слагаемое можно отбросить. Интеграл от третьего слагаемого выражается через функцию Бесселя. В результате:

$$\mathfrak{S} = \frac{4\pi\sqrt{\pi}\omega p^2 N_0}{n_0 c\hbar k U} \cdot e^{-\left(\frac{\omega-\omega_{21}}{kU}\right)} \cdot \left(\frac{\gamma\left(\rho_{22}^0 - \rho_{11}^0\right)}{\sqrt{\gamma^2 + R^2}} + e^{-\gamma t} \cdot J_0(Rt)\right).$$

Здесь слагаемое независящее от времени — это стационарное насыщенное светом поглощение, слагаемое пропорциональное  $e^{-\gamma t}$  — это нестационарное поглощение,  $J_0$  — функция Бесселя с нулевым значком.

Напомним, что одно из определений функции Бесселя имеет вид:

$$J_m(z) = \frac{1}{\pi} \int_0^{\pi} \cos(mt - z \cdot \sin(t)) \cdot dt.$$

Интенсивность на выходе кюветы для оптически тонкого слоя среды толщиной *L*:

 $I_{\rm bolx} = I_{\rm ex} \left( 1 - \aleph L \right).$ 

\_\_\_\_\_

Как уже говорилось выше, вид зависимости интенсивности света на выходе из кюветы от времени различается при условии R << kU и при условии kU << R.

В случае относительно слабого поля  $\gamma << R << kU$ :



Быстрый спад интенсивности за первый промежуток времени  $\frac{1}{kU}$  полученная нами выше формула не описывает, так как она была получена при предположении, что доплеровская ширина линии kU велика kU >> R.

В случае сильного светового поля R >> kU:



#### Затухание свободной поляризации (ЗСП). Сверхизлучение.

Оптическая схема опыта для наблюдения сигнала затухания свободной поляризации обычна для нестационарной лазерной спектроскопии:



На входе в кювету свет резко выключают.



Как показывает опыт, зависимость интенсивности света на выходе кюветы от времени имеет следующий вид:



Сигнал ЗСП — это послесвечение диполей, раскачанных световым полем.

Особенность сигнала состоит в том, что он спадает гораздо быстрее, чем затухает излучение каждого диполя:  $I \sim e^{-\gamma t}$ .

Причина быстрого спада в том, что сначала диполи молекул излучают синфазно, и их излучения складываются по амплитуде, а затем происходит расфазировка диполей. При полной расфазировке излучение диполей складывается по интенсивности.

Если складываются амплитуды, то амплитуда суммарной волны в N раз больше, чем амплитуда излучения одной молекулы, здесь N — общее число молекул. Интенсивность света суммарной волны пропорциональна квадрату амплитуды и, следовательно, пропорциональна  $N^2$ .

Если излучение разных молекул складывается по интенсивности, то суммарная интенсивность в N раз больше интенсивности излучения одной молекулы.

Следовательно, при расфазировке диполей интенсивность света уменьшается примерно в N раз за время расфазировки, которое может быть гораздо меньше времени  $\frac{1}{\gamma}$ , за которое затухает, как  $e^{-\gamma t}$ , излучение одной молекулы.

Обсудим подробнее механизм и время расфазировки.

Колебания диполя похожи на колебания механического маятника. Пока есть вынуждающая сила со стороны светового поля, вынужденные колебания диполя происходят на частоте светового поля. Как только световое поле выключают, колебания продолжаются с той же фазы, но уже на собственной частоте колебаний диполя, на частоте перехода  $\omega_{21}$ .

В системе отсчета диполя каждый диполь после выключения поля совершает колебания и излучает на частоте перехода  $\omega_{21}$ , но в лабораторной системе отсчета частоты излучений диполей оказываются различными из-за различных доплеровских сдвигов  $kV_{z}$ .

Частота излучения диполя в лабораторной системе отсчета равна  $\omega_{21} + kV_z$ , где  $V_z$  — проекция скорости диполя на направление излучения диполя.

Время затухания сигнала ЗСП — это время расфазировки диполей. Время расфазировки зависит от разности частот излучения разных диполей, то есть от ширины спектра излучения  $\Delta \omega$ .

Тогда время затухания ЗСП равно  $\Delta t \approx \frac{1}{\Delta \omega}$ .

Величина  $\Delta \omega$  определяется возможными значениями  $kV_z$ . Ситуация различается в двух случаях. Если частота Раби меньше доплеровской ширины спектральной линии R < kU, то резонансно со светом взаимодействуют молекулы, для которых расстройка  $\Omega = \omega - kV_z - \omega_{21}$  меньше частоты Раби

 $|\Omega| < R$ . Тогда  $\Delta \omega \approx \Delta (kV_z) \approx R$  и  $\Delta t \approx \frac{1}{R}$  — ожидаемое время затухания ЗСП.



Если частота Раби больше доплеровской ширины R > kU, то  $\Delta \omega \approx kU$  и  $\Delta t \approx \frac{1}{kU}$ .

Что происходит с энергией запасенной диполями? Пропадает ли эта энергия за время  $\frac{1}{R}$  (в случае R < kU) или за время  $\frac{1}{\nu}$ ?

Оказывается, что энергия пропадает медленно. Тогда куда же она пропадает?

Дело в том, что синфазно излучение диполей только в первый момент и только вперед по ходу луча. Расфазировка диполей приводит к перераспределению излучения диполей по всем направлениям без изменения мощности излучения каждого диполя по всем направлениям и без изменения мощности излучения всей среды.

Сверхизлучение.

Сверхизлучение — это не ЗСП, а скорее наоборот.

Сверхизлучение — это ускоренное падение интенсивности за счет ускоренного распада возбуждения молекул, когда  $\rho_{22}$  спадает быстрее, чем  $e^{-\gamma_2 t}$ , а сигнал ЗСП — это ускоренное падение интенсивности на приемнике без изменения скорости распада возбуждения молекул  $\rho_{22} \sim e^{-\gamma_2 t}$ .

Сверхизлучение — это синфазное излучение диполей во всех направлениях, и ускоренная потеря энергии диполей.

При сверхизлучении мощность излучения пропорциональна квадрату концентрации  $\sim N_0^2$ , а при обычном излучении пропорциональна первой степени концентрации  $\sim N_0$ .

Рассмотрим диполи молекул, расположенные в малом объеме  $V < \left(\frac{\lambda}{2}\right)^3$ .

Пусть молекулы неподвижны, а их диполи осциллируют во внешнем световом поле. После выключения света диполи осциллируют синфазно и синфазно излучают во всех направлениях, так как разность хода для излучения диполей в любом направлении меньше  $\frac{\lambda}{2}$ . При этом их излучения складываются по амплитуде. Амплитуда суммарной волны в N раз больше амплитуды излучения одного диполя, а интенсивность и мощность в  $N^2$  раз больше.

Такое сверхизлучение проявляется и в случае вынужденного светом и в случае спонтанного излучения молекул, предварительно заброшенных на верхний уровень энергии. В случае спонтанного излучения появляющиеся осциллирующие диполи вынуждают спонтанный распад друг друга.

Заметим, что уравнения для матрицы плотности с феноменологическим затуханием не содержат сверхизлучения, так как феноменологически распад пропорционален  $e^{-\gamma_2 t}$  по определению.

Количественное описание ЗСП — затухания свободной поляризации.

Сигнал ЗСП можно рассчитать согласно следующей логической цепочке:

$$\vec{B}_{cmay}(V_z) \to \vec{B}_{3am}(V_z, t) \to \vec{P}_{V_z}(t) \to \tilde{E}_{6blx}(t) \to \mathcal{E}_{0_{6blx}}(t).$$

Сначала найдем стационарное значение вектора Блоха  $\vec{B}_{cmay}$  перед выключением светового поля. Это стационарное значение является решением уравнения для вектора Блоха с нулевой производной по времени:

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

Решение этих трех линейных уравнений с тремя неизвестными координатами вектора Блоха имеет следующий вид:

$$\begin{cases} B_{1cmay} = \frac{R\Omega\left(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0}\right)}{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \\ B_{2cmay} = \frac{\gamma R\left(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0}\right)}{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \\ B_{3cmay} = \frac{\left(\gamma^{2} + \Omega^{2}\right)\left(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0}\right)}{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \end{cases}$$

После выключения светового поля вектор Блоха затухает к новому стационарному значению  $\vec{B}^0 = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \rho_{22}^0 - \rho_{11}^0 \end{pmatrix}$ . Как обсуждалось ранее в вопросе о

решениях уравнения для вектора Блоха, затухающее решение представляет собой вектор, вращающийся с угловой скоростью  $-\vec{R}_{\Omega}$ . Длина вектора затухающего решения экспоненциально убывает во времени, как  $e^{-\gamma t}$ .

Величину затухающего решения в нулевой момент времени выключения светового поля можно найти из начальных условий:

$$\vec{B}_{cmay} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0} \end{pmatrix} + \vec{B}_{3am}(0)$$

Откуда

$$\vec{B}_{3am}(0) = \begin{pmatrix} \frac{R\Omega(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0})}{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \\ \frac{\gamma R(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0})}{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \\ -\frac{R^{2}(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0})}{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \end{pmatrix}.$$

Здесь  $R = \frac{p \mathcal{E}_0}{\hbar}$  — частота Раби для светового поля перед его

выключением.

Затухающее решение вращается вокруг вертикально оси, вокруг вектора:

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

так как после выключения светового поля частота Раби равна нулю R = 0.

Нас будут интересовать только две первых компоненты  $B_1$  и  $B_2$  вектора блоха, так как только от них зависит поляризация среды, и только от них зависит сигнал затухания свободной поляризации.

Вращение с частотой  $(-\Omega)$  затухающей, как  $e^{-\gamma t}$ , составляющей вектора Блоха в горизонтальной плоскости  $\vec{B}_{\perp}$  означает, что первые две компоненты вектора Блоха подчиняются следующим уравнениям:

$$\begin{cases} B_{13am} = e^{-\gamma t} B_{\perp} \cos(\beta - \Omega t) \\ B_{23am} = e^{-\gamma t} B_{\perp} \sin(\beta - \Omega t) \end{cases}.$$

Сравнивая эти уравнения и значения первых двух проекций затухающей составляющей вектора Блоха в нулевой момент времени  $\vec{B}_{3am}(0)$ , можно найти константы  $B_{\perp}$  и  $\beta$ .

В результате получаем:

$$\begin{split} B_{13am} &= \frac{R\left(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0}\right)}{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \cdot e^{-\gamma t} \left(\Omega \cdot \cos\left(\Omega t\right) + \gamma \cdot \sin\left(\Omega t\right)\right) \\ B_{23am} &= \frac{R\left(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0}\right)}{\gamma^{2} + R^{2} + \Omega^{2}} \cdot e^{-\gamma t} \left(\gamma \cdot \cos\left(\Omega t\right) - \Omega \cdot \sin\left(\Omega t\right)\right) \end{split}$$
, где  $\Omega = \omega - kV_{z} - \omega_{21}.$ 

Распределение поляризации среды по проекции скорости молекул на луч выражается через две первые компоненты вектора Блоха:

$$P_{V_z} = p N_{0_{V_z}} \left( B_1(V_z) \cdot \cos(\varphi) - B_2(V_z) \cdot \sin(\varphi) \right) = \operatorname{Re} \left( p N_{0_{V_z}} \left( B_1(V_z) - iB_2(V_z) \right) e^{-i\varphi} \right)$$

Откуда комплексная амплитуда поляризации среды выражается через первые две компоненты вектора Блоха:

$$\tilde{P}_0 = \int_{-\infty}^{+\infty} p N_{0_{V_z}} \cdot \left( B_{13am}(V_z) - i B_{23am}(V_z) \right) \cdot dV_z \,.$$

Далее, амплитуду светового поля на выходе кюветы можно найти с помощью укороченного волнового уравнения:

$$\frac{dE_0}{dz} = 2\pi i \frac{\omega}{n_0 c} \tilde{P}_0 \,.$$

Будем считать, что длина кюветы  $\Delta z$  мала. Тогда производная от амплитуды света по координате почти постоянна вдоль луча, и

$$\Delta \tilde{E}_0 = 2\pi i \frac{\omega}{n_0 c} \tilde{P}_0 \cdot \Delta z \,.$$

Света на входе в кювету больше нет, поэтому

$$\tilde{E}_{0_{\rm GBLX}} = \Delta \tilde{E}_0 = 2\pi i \frac{\omega}{n_0 c} \tilde{P}_0 \cdot \Delta z$$

Попытаемся найти амплитуду светового поля на выходе кюветы при условии R << kU.

Функция 
$$B_{13am} = \frac{R\left(\rho_{22}^0 - \rho_{11}^0\right)}{\gamma^2 + R^2 + \Omega^2} \cdot e^{-\gamma t} \left(\Omega \cdot \cos(\Omega t) + \gamma \cdot \sin(\Omega t)\right)$$
 — узкая в

зависимости от  $\Omega$  по сравнению с kU и нечетная функция от  $\Omega$ , поэтому интеграл  $\int_{-\infty}^{+\infty} N_{0_{V_z}} \cdot p \cdot B_{1_{3am}} \cdot dV_z$  очень мал, и им можно пренебречь. Если считать, что  $N_{0_{V_z}} = const$ , то интеграл от нечетной функции просто равен нулю, но  $N_{0_{V_z}}$  — медленная (широкая) функция от  $V_z$  и от  $\Omega = \omega - kV_z - \omega_{21}$ , поэтому интеграл просто очень мал.

Тогда

$$\begin{split} \tilde{E}_{0_{gblx}} &= 2\pi \frac{\omega p \Delta z}{n_0 c} \int_{-\infty}^{+\infty} N_{0_{V_z}} B_{2_{3am}}(V_z) dV_z \\ B_{2_{3am}} &= \frac{R \left(\rho_{22}^0 - \rho_{11}^0\right)}{\gamma^2 + R^2 + \Omega^2} \cdot e^{-\gamma t} \left(\gamma \cdot \cos\left(\Omega t\right) - \Omega \cdot \sin\left(\Omega t\right)\right) \quad \Longrightarrow \\ \tilde{E}_{0_{gblx}} &= 2\sqrt{\pi} \mathcal{E}_0 \frac{\omega p^2 N_0 \left(\rho_{22}^0 - \rho_{11}^0\right) \Delta z}{n_0 c \hbar k U} e^{-\gamma t} e^{-\left(\frac{\omega - \omega_{21}}{k U}\right)^2} \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\Omega \cdot \sin\left(\Omega t\right) - \gamma \cdot \cos\left(\Omega t\right)}{\gamma^2 + R^2 + \Omega^2} d\Omega \end{split}$$

Второе слагаемое под интегралом меньше первого при условии  $\gamma \ll R$ , тогда

$$\begin{split} \tilde{E}_{0_{gblx}} &= 2\sqrt{\pi} \mathcal{E}_{0} \frac{\omega p^{2} N_{0} \left(\rho_{22}^{0} - \rho_{11}^{0}\right) \Delta z}{n_{0} c \hbar k U} e^{-\gamma t} e^{-\left(\frac{\omega - \omega_{21}}{kU}\right)^{2}} F\left(\sqrt{\gamma^{2} + R^{2}} t\right), \text{ где} \\ F\left(x\right) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{t \cdot \sin(t)}{x^{2} + t^{2}} dt \,. \end{split}$$

Интеграл можно найти, как мнимую часть интеграла  $\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{t \cdot e^{it}}{x^2 + t^2} dt$ . Путь

интегрирования этого интеграла можно замкнуть на комплексной плоскости по полуокружности в верхней части комплексной полуплоскости. Интеграл по замкнутому контуру на комплексной плоскости равен коэффициенту  $2\pi i$ ,

умноженному на вычет  $\operatorname{Res}_{t=ix} \frac{t \cdot e^{it}}{x^2 + t^2}$  в точке t = ix. В результате интеграл равен

$$F(x) = \pi \cdot e^{-x}$$
.  
 $F\left(\sqrt{\gamma^2 + R^2}t\right) \approx F(Rt)$  при  $R \gg \gamma$ .  
Тогда

$$\mathcal{E}_{0_{Bblx}} = \tilde{E}_{0_{Bblx}} = -2\pi\sqrt{\pi}\mathcal{E}_{0} \frac{\omega p^{2}N_{0} \left(\rho_{11}^{0} - \rho_{22}^{0}\right)\Delta z}{n_{0}c\hbar kU} e^{-\left(\gamma + R\right)t} e^{-\left(\frac{\omega - \omega_{21}}{kU}\right)^{2}}$$

Отметим, что сигнал ЗСП пропорционален  $\mathcal{E}_{0_{Gbbx}} \sim e^{-(\gamma+R)t}$ , а оптические нутации пропорциональны  $I \sim e^{-\gamma t} J_0(Rt)$ . Тогда при условии  $R \ll kU$  сигнал ЗСП, как и сигнал оптических нутаций, затухает примерно за один период колебаний с частотой Раби R.

## Площадь светового импульса. Самоиндуцированная прозрачность.

Частота Раби *R* пропорциональна амплитуде света  $\mathcal{E}_0$ , так как  $R = \frac{p\mathcal{E}_0}{\hbar}$ . Рассмотрим световой импульс с некоторой зависимостью частоты Раби от времени представленной на нижеследующем рисунке:



Площадью светового импульса называется интеграл:

 $S = \int R(t) dt$ , который совпадает с площадью под графиком R(t).

Площадь светового импульса рассматривается только в сильном световом поле, поэтому пусть  $R >> |\Omega|$ . Тогда  $R_{\Omega} = \sqrt{R^2 + \Omega^2} \approx R$ .

Вектор Блоха вращается вокруг вектора  $-\vec{R}_{\Omega}$  с угловой скоростью  $R_{\Omega}$ . Тогда интеграл  $\int R_{\Omega} dt$  равен углу поворота вектора Блоха вокруг вектора  $-\vec{R}_{\Omega}$ .

С учетом неравенства  $R >> |\Omega|$  получаем  $\vec{R}_{\Omega} = \begin{pmatrix} R \\ 0 \\ \Omega \end{pmatrix} \approx \begin{pmatrix} R \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$ , и площадь светового

импульса  $S = \int R(t) dt$  равна углу поворота вектора Блоха вокруг оси 1 в левую сторону за время светового импульса.

Если площадь светового импульса равна  $\frac{\pi}{2}$ , то такой световой импульс называют  $\frac{\pi}{2}$  импульсом. Такой импульс поворачивает вектор Блоха на угол  $\frac{\pi}{2}$ вокруг оси 1 в левую сторону. Аналогично  $\pi$  импульс поворачивает вектор Блоха вокруг оси 1 на угол  $\pi$ .  $2\pi$  импульс поворачивает вектор Блоха на полный оборот и возвращает его в исходное направление, ничего не изменяя в среде. Если в среде ничего не изменяется, значит, среда не поглощает свет.

Если площадь светового импульса меньше, чем  $2\pi$ , то он заметно поглощается средой. Если площадь импульса больше, чем  $2\pi$ , но меньше, чем  $4\pi$ , то импульс поглощается средой до тех пор, пока его площадь не сравнивается с  $2\pi$ . После этого получившийся  $2\pi$  импульс распространяется в среде, почти не поглощаясь. Следовательно, мощный свет распадается в среде на  $2\pi$  импульсы, которые затем проходят среду почти без поглощения.

Такое распространение света в среде называют явлением самоиндуцированной прозрачности.

#### <u>Двухимпульсное фотонное эхо.</u>

Оптическая схема регистрации фотонного эха — это обычная схема наблюдения нестационарных эффектов нелинейной лазерной спектроскопии:



Пусть на входе в кювету зависимость интенсивности от времени имеет следующий вид:



Экспериментально наблюдается следующая зависимость интенсивности света на выходе кюветы от времени:



После  $\frac{\pi}{2}$  и  $\pi$  световых импульсов наблюдается еще один световой импульс, который называют фотонным эхо. Временной интервал между  $\frac{\pi}{2}$  и  $\pi$  импульсами равен интервалу между  $\pi$  импульсом и фотонным эхо.

Оказывается, что сигнал фотонного эха можно рассматривать, как два сигнала ЗСП, первый из которых обращен во времени:

Эхо = 2 ЗСП.

Прежде чем объяснить сигнал фотонного эха заметим, что первый  $\frac{\pi}{2}$  импульс на выходе кюветы искажен. Вершина импульса искажена оптическими нутациями. В  $\frac{\pi}{2}$  импульсе помещается четверть периода оптических нутаций. На рисунке изображен вариант оптических нутаций при условии R >> kU. Задний фронт  $\frac{\pi}{2}$  импульса растянут сигналом ЗСП. Любопытно, что второй импульс ( $\pi$  импульс) не должен иметь сигнала ЗСП при идеальном соблюдении равенства площадей импульсов величинам  $\frac{\pi}{2}$  и  $\pi$ .

Рассмотрим, что происходит с вектором Блоха в ключевые моменты времени, обозначенные на последнем рисунке, как  $t_1$ ,  $t_2$ ,  $t_3$ ,  $t_4$ ,  $t_5$ , и между этими моментами времени.

В начальный момент времени в среде нет поляризации, значит, первые две компоненты вектора Блоха равны нулю.

Обычно вероятность обнаружить молекулу на нижнем уровне энергии больше, чем вероятность обнаружить на верхнем уровне.

Следовательно, в момент времени  $t_1$  вектор Блоха направлен вертикально вниз.

На промежутке времени  $(t_1, t_2)$  под действием  $\frac{\pi}{2}$  импульса вектор Блоха поворачивается на угол  $\frac{\pi}{2}$  вокруг оси 1 в левую сторону:



На промежутке времени  $(t_2, t_3)$  светового поля нет, поэтому вектор Блоха

вращается в левую сторону вокруг вектора  $\vec{R}_{\Omega} = \begin{pmatrix} R \\ 0 \\ \Omega \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \Omega \end{pmatrix}$ . Для молекул с разной лучевой скорости V

различные значения. В результате векторы Блоха для молекул с разными лучевыми скоростями вращаются вокруг вертикальной оси в разных направлениях и с разными угловыми скоростями Ω.

В начале промежутка времени  $(t_2, t_3)$  вектор Блоха направлен против оси 2 для всех молекул, как это показано на рисунке приведенном выше. Затем на промежутке  $(t_2, t_3)$  векторы Блоха разбегаются в горизонтальной плоскости веером вокруг минус оси 2:



На рисунке в момент времени t<sub>3</sub> изображены только три вектора Блоха из всего веера векторов.

На промежутке времени ( $t_3, t_4$ )  $\pi$  импульс света поворачивает веер векторов Блоха вокруг оси 1 в левую сторону на угол  $\pi$ :



В начале этого промежутка времени веер векторов Блоха направлен против оси 2, в конце промежутка времени веер векторов Блоха направлен вокруг положительного направления оси 2.

На промежутке времени  $(t_4, t_5)$  векторы Блоха снова вращаются в левую

сторону вокруг вектора  $\vec{R}_{\Omega} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \Omega \end{pmatrix}$ . Для молекул с каждым значением лучевой

скорости  $V_z$  вращение вектора Блоха происходит вокруг вертикальной оси в ту же сторону и с той же скоростью, что и на промежутке времени  $(t_2, t_3)$ :



Только теперь веер векторов Блоха не разбегается, а наоборот сбегается к положительному направлению оси 2.

К моменту времени  $t_5$  векторы Блоха всех молекул направлены в одну и ту же сторону — в положительном направлении оси 2.

Вектор Блоха в горизонтальной плоскости означает наличие поляризации среды, а поворот вектора блоха в горизонтальной плоскости равен сдвигу фазы поляризации относительно фазы светового поля.

Однонаправленность векторов Блоха в момент времени *t*<sub>5</sub> означает синфазность колебаний диполей всех молекул независимо от их лучевой скорости. Синфазные колебания приводят к синфазному излучению молекул в направлении проходящей световой волны. Синфазные излучения складываются по амплитуде, а не по интенсивности. В результате получается свет с большой амплитудой и интенсивностью. Это и есть фотонное эхо.

После момента времени t<sub>5</sub> векторы Блоха продолжают вращения вокруг вертикальной оси с разными скоростями и разбегаются веером вокруг положительного направления оси 2. Разбегание векторов Блоха веером в горизонтальной плоскости означает расфазировку излучения диполей молекул. Расфазировка диполей приводит к появлению сигнала ЗСП. То есть вторая половина сигнала фотонного эха представляет собой обычный сигнал ЗСП.

Перед моментом времени  $t_5$  веер векторов Блоха сбегается вокруг положительного направления оси 2. Схлопывание веера векторов означает фазировку диполей и соответственное увеличение интенсивности света в направлении проходящей световой волны. То есть перед моментом времени  $t_5$  наблюдается тот же сигнал ЗСП только обращенный по времени. На этом промежутке времени вместо экспоненциального спада сигнала ЗСП наблюдается экспоненциальный рост с той же скоростью обращенного во времени сигнала ЗСП.

В результате можно сказать, что сигнал фотонного эха равен двум сигналам ЗСП.

\_\_\_\_\_

В эксперименте трудно сделать так, чтобы площадь светового импульса была бы равна в точности  $\frac{\pi}{2}$  или в точности  $\pi$ . Если в эксперименте по наблюдению фотонного эха площади двух световых импульсов не совсем оптимальны  $\begin{cases} S_1 \neq \frac{\pi}{2}, \text{ то сигнал фотонного эха все равно наблюдается, только} \\ S_2 \neq \pi \end{cases}$ 

имеет меньшую амплитуду.

Измеряя зависимость амплитуды эха от времени задержки  $\tau$  между двумя импульсами, можно измерить скорость затухания поляризации среды  $\Gamma$  и получить информацию о молекулярных столкновениях.

Константа Г определяется из сравнения экспериментальной зависимости амплитуды эха от времени и зависимости:

 $S \sim e^{-2\Gamma \tau}$ .

Показатель экспоненты содержит сомножитель  $2\tau$ , так как поляризация среды затухает как на промежутке времени  $\tau$  между  $\frac{\pi}{2}$  и  $\pi$  импульсами, так и на промежутке  $\tau$  между  $\pi$  импульсом и сигналом эха.

## Трехимпульсное фотонное эхо.

В опыте используется обычная для нелинейной лазерной спектроскопии оптическая схема:



Пусть зависимость интенсивности света на входе в кювету от времени представляет собой три световых импульса. Тогда зависимость интенсивности света на выходе кюветы, как функция времени, имеет следующий вид:



Отмеченный на рисунке, как эхо эха, сигнал иначе называют еще эхоизображение.

Рассмотрим таблицу оптимальных площадей световых импульсов для регистрации каждого эха.

\ импульсы \ Эхо \	1	2	3
1-2	$\frac{\pi}{2}$	π	0
индуцированное	$\frac{\pi}{2}$	$\frac{\pi}{2}$	$\frac{\pi}{2}$
эхо эха	$\frac{\pi}{2}$	π	π
2-3	0	$\frac{\pi}{2}$	π
1-3	$\frac{\pi}{2}$	0	π

Три из пяти сигналов эха не нуждаются в особом объяснении. Это двухимпульсные эхо 1-2, эхо 2-3 и эхо 1-3.

Обсудим формирование эхо эха. Рассмотрим, что происходит с вектором Блоха, начиная с момента времени формирования эха 1-2.

В момент эха 1-2 векторы Блоха всех молекул имеют одинаковое направление — это положительное направление оси 2. Внешнего светового поля при этом нет, поэтому векторы Блоха, продолжая вращения вокруг вертикальной оси, расходятся веером в горизонтальной плоскости.

Третий световой импульс, если это  $\pi$  импульс, поворачивает веер векторов Блоха вокруг оси 1 на угол  $\pi$ . После этого веер снова оказывается в горизонтальной плоскости только вокруг отрицательного направления оси 2. Веер векторов складывается и соберется в один вектор за то же время, в течение которого веер раскрывался после эха 1-2.

В тот момент, когда веер соберется, все диполи снова будут излучать свет синфазно. В направлении прошедшей световой волны излучения диполей складываются по амплитуде, и получается световой импульс эхо эха.

Эхо 1-2 и эхо эха симметрично расположены по оси времени относительно третьего светового импульса.

\_\_\_\_\_

Обсудим теперь формирование индуцированного эха.

В обычном двухимпульсном эхо второй импульс должен иметь площадь равную  $\pi$ . При формировании индуцированного эха роль второго светового

импульса площадью  $\pi$  играют второй и третий импульсы с площадями по  $\frac{\pi}{2}$ .

В промежуток времени между первым и вторым импульсами света вектор Блоха разворачивается в горизонтальный веер вокруг отрицательного направления оси 2.

Второй световой импульс поворачивает веер на угол  $\frac{\pi}{2}$  в левом

направлении вокруг оси 1. Центр веера оказывается направленным вертикально вверх. Дальше внешнее световое поле выключается, и векторы Блоха начинают вращаться вокруг вертикальной оси. При этом края веера вращаются во встречных направлениях, а середина веера остается неподвижной. Если рассмотреть половину веера от вертикальной оси до одного из краев веера, то в процессе вращения части веера, ближе расположенные к оси 3 вращаются медленнее. В результате половинка веера сворачивается вокруг оси 3 как бумага, неплотно свернутая в трубку конусом. Вторая половина веера сворачивается в такую же трубку, но во встречном направлении. Две взаимопересекающиеся трубки образуют нечто вроде цветка розы.

Третий световой импульс поворачивает эту розу в положительном направлении оси 2.

Некоторая часть векторов Блоха образующих розу более или менее оказывается в горизонтальной плоскости, и после третьего светового импульса половина этих векторов собирается в направлении оси 2 за тот же промежуток времени, за который веер расходился между первым и вторым световыми импульсами. Собираются те векторы, у которых вначале второго светового импульса и в конце третьего импульса одинаковая величина проекции вектора Блоха на ось 1. Вторая половина горизонтальных векторов Блоха — это те векторы Блоха, у которых проекция на ось 1 изменила знак.

Часть векторов Блоха собравшихся вокруг оси 2 создает синфазное излучение диполей и формирует индуцированное эхо.

Зависимость амплитуды индуцированного эха от временных задержек  $\tau_{12}$  и  $\tau_{23}$  между импульсами имеет следующий вид:

$$S \sim e^{-\Gamma \tau_{12}} \cdot \left( e^{-\gamma_1 \tau_{23}} + e^{-\gamma_2 \tau_{23}} \right) \cdot e^{-\Gamma \tau_{12}}.$$

Такая форма зависимости определяется тем, что в течение промежутка времени  $2\tau_{12}$  векторы Блоха расположены почти в горизонтальной плоскости, что соответствует наличию поляризации среды, которая затухает со скоростью Г. На протяжении промежутка времени  $\tau_{23}$  векторы Блоха направлены вертикально. Вертикальная составляющая вектора Блоха — это инверсия среды, которая равна  $\rho_{22} - \rho_{11}$ . Разность заселенностей затухает со скоростями затухания уровней энергии  $\gamma_1$  и  $\gamma_2$ .

Сравнение результатов эксперимента с формулой позволяет определить величины констант Г,  $\gamma_1$ ,  $\gamma_2$ , что представляет интерес для исследования молекулярных столкновений.

# Цуг эха Карра — Парселла.

В обычной оптической схеме



рассмотрим реакцию среды на систему световых импульсов, в которой первый импульс имеет площадь  $\frac{\pi}{2}$ , а каждый из остальных импульсов имеет площадь  $\pi$ , причем  $\pi$  импульсы идут с одинаковым шагом по оси времени. Интервал между  $\frac{\pi}{2}$  и первым  $\pi$  импульсом вдвое меньше интервалов между  $\pi$  импульсами.

Зависимость амплитуды света на приемнике излучения от времени имеет следующий вид:



При таком расположении световых импульсов индуцированное эхо совпадает по положению с эхо эха, но амплитуда индуцированного эха мала, и им можно пренебречь. В таком случае каждое следующее эхо является эхом предыдущего эха. Это и есть цуг эха Карра–Парселла.

Если вместо интенсивности света по вертикали отложить частоту Раби световых импульсов, то площадь импульса на рисунке равна площади светового импульса. Тогда если высота  $\pi$  импульсов равна R, то ширина равна  $\pi$ 

 $\frac{\pi}{R}$ .

Амплитуда эха  $S_n$  зависит от его номера n и задержки  $\tau$  следующим образом:

 $S_n \sim e^{-\Gamma\left(2\tau + \frac{2}{R}\right)n}.$ 

Вектор Блоха почти все время находится в горизонтальной плоскости, поэтому скорость затухания амплитуды эха пропорциональна скорости затухания поляризации Г. Период следования  $\pi$  импульсов равен  $2\tau + \frac{\pi}{R}$ , но в показателе экспоненты мы видим сомножитель  $2\tau + \frac{2}{R}$ . Эффективное

уменьшение времени связано с тем, что во время поворота векторов Блоха они не полностью находятся в горизонтальной плоскости. При выводе формулы предполагается, что скорости затухания уровней энергии малы по сравнению со скоростью затухания поляризации  $\gamma_1, \gamma_2 \ll \Gamma$ .

Измерение амплитуды эха в цуге эха Карра–Парселла позволяет определить константу Г, величина которой несет информацию о столкновениях молекул.

## Три основных метода быстрого включения и выключения светового поля.

1-ый метод. Импульсный лазер.

Недостатки:

1. Амплитуда светового поля непостоянна и зависит от времени.

Так вместо прямоугольной ступеньки включения светового поля импульсный лазер дает ступеньку со сколом вершины. По мере насыщения усиления падает мощность генерации лазера:



2. Плохо воспроизводится амплитуда излучения.

При этом теряет смысл накопление сигнала, особенно в случае оптических нутаций, где частота колебаний интенсивности на выходе из кюветы зависит от амплитуды света на входе в кювету.

Наряду с отмеченными недостатками использования импульсного лазера заметим, что при любом способе включения и выключения светового поля есть общие трудности регистрации эффектов нестационарной лазерной спектроскопии. Все виды сигналов нестационарных эффектов стараются наблюдать в оптически тонком слое, так как в оптически толстом слое заметно изменяется интенсивность света, что приводит к трудностям интерпретации результатов.

В оптически тонком слое сигналы малы. Для оптических нутаций проблему удается частично решить с помощью вычитания из сигнала на выходе кюветы входного сигнала. Вычитание производится после регистрации обеих интенсивностей. Вычитаются на дифференциальном усилителе электрические сигналы с двух приемников света:



2-ой метод. Штарковское переключение частоты.



Если штарковские сдвиги верхнего и нижнего уровней энергии различаются, то сдвигается частота перехода.

Контур линии поглощения сдвигается по частоте относительно частоты генерации лазера:



Так можно выключить или включить поглощение для молекул, не изменяя параметров светового поля.

Преимущество штарковского переключения частоты.

1. Легкость управления. Как следствие — импульсы любой ширины и частоты.

2. Гетеродинный прием сигналов ЗСП и фотонного эха, но не оптических нутаций.

Гетеродинный прием рассмотрим чуть позже.

Недостаток штарковского переключения частоты проявляется в случае вырожденных уровней энергии. Подуровни вырожденного уровня энергии имеют различный штарковский сдвиг, что затрудняет интерпретацию результатов опытов.