



САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКИЙ
ГОСУДАРСТВЕННЫЙ
УНИВЕРСИТЕТ

ПРИОРИТЕТНЫЙ
НАЦИОНАЛЬНЫЙ ПРОЕКТ
"ОБРАЗОВАНИЕ"



Проект «Инновационная образовательная среда в классическом университете»

Пилотный проект № 22 «Разработка и внедрение инновационной образовательной программы «Прикладные математика и физика»»

Физический факультет

Кафедра фотоники

И.Я.Герловин

**КОГЕРЕНТНАЯ ОПТИЧЕСКАЯ ДИНАМИКА
ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ НАНОСТРУКТУР.**

Учебно-методическое пособие

Санкт Петербург
2007 г.

- Рецензент: зав. кафедрой фотоники, к.ф.м.н., Ю.В.Чижов.
- Печатается по решению методической комиссии физического факультета СПбГУ.
- Рекомендовано Ученым советом физического факультета СПбГУ.

КОГЕРЕНТНАЯ ОПТИЧЕСКАЯ ДИНАМИКА ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ НАНОСТРУКТУР. – СПб., 2007

Рассмотрено поведение базовой модельной системы (атом в двухуровневом приближении) при взаимодействии с широкополосным или квазимонохроматическим световым полем. Поясняется, как нелинейность воздействия поля на атом приводит к четырехволновому смешению, и на примере планарной геометрии (тонкий слой) прослеживаются правила сложения волновых векторов. Демонстрируется, как при учете неоднородного уширения в атомном ансамбле формируется задержанный отклик - фотонное эхо. Описывается интерпретация явления фотонного эхо в геометрической картине поворотов вектора Блоха. Обсуждается возможность (а также и ограничения) применения простых моделей нелинейного взаимодействия, установленных для атомов, к возбуждениям в полупроводнике.

Пособие предназначено для студентов 5-7-го курсов, аспирантов, соискателей и других обучающихся, участвующих в учебно-научной работе ЦКП «Прикладная нанофотоника».

1. Введение

Термин «когерентная оптическая динамика» характеризует процессы, происходящие при взаимодействии света с материальной средой за очень короткие промежутки времени, вплоть до единиц пикосекунд ($1\text{ps} = 10^{-12}\text{ s}$). Малость этого промежутка можно оценить, если учесть, что электромагнитное излучение с длиной волны $1\ \mu\text{m}$ совершает за 1ps всего около 300 колебаний. Тенденция к изучению и использованию все более и более быстрых процессов является одним из основных направлений развития науки и техники. Так же как тенденция к уменьшению пространственных размеров изучаемых систем вплоть до атомных, она стимулируется, в частности, потребностями общества в ускорении работы систем передачи и обработки информации.

Возможность наблюдения и изучения процессов, идущих за столь короткие времена, обусловлена появлением сверхбыстрой измерительной техники и созданием искусственных материалов, в которых оптические процессы идут с такой скоростью. К таким материалам относятся, в первую очередь, совершенные полупроводниковые гетероструктуры, создаваемые методом молекулярной пучковой эпитаксии. Как будет показано ниже, процессы резонансного взаимодействия со светом в таких структурах могут происходить за времена, не превышающие единиц пикосекунд. Характерной особенностью резонансного взаимодействия является существенная роль когерентности, т.е. сохранения фазовых соотношений между колебаниями поля световой волны и возбужденными состояниями полупроводника. Динамика таких процессов радикально отличается от динамики стандартных процессов поглощения и излучения света. Задача настоящего пособия – дать общее представление о физике процессов когерентного взаимодействия света с веществом и о принципиальных особенностях этих процессов в квантово-размерных полупроводниковых гетероструктурах.

2. Оптический резонанс в двухуровневой системе [1,2].

Рассмотрение когерентного взаимодействия света и вещества проще всего начать с изолированной двухуровневой системы, т.е. с квантово-механической системы, имеющей только два энергетических состояния: основное и возбужденное. Роль такой системы может, в первом приближении, играть изолированный атом, одно из возбужденных состояний которого находится в резонансе с электромагнитным излучением. Условием резонанса является равенство разности энергий возбужденного и основного состояний атома и энергии кванта излучения. Состояние атома характеризуется населенностями основного (n_1) и возбужденного (n_2) уровней, причем: $n_1 + n_2 = 1$.

Статистическое описание взаимодействия со светом сводится к тому, что атом, на который падает пучок фотонов, может с вероятностью B_{12} поглотить фотон и перейти в возбужденное состояние, а затем, спонтанно испустив квант света, вернуться в основное состояние со скоростью A_{21} . Возможен также

стимулированный светом переход в основное состояние с вероятностью B_{21} ($B_{12} = B_{21}$). Динамика населенности возбужденного состояния описывается в этом случае уравнением баланса, вида:

$$\frac{dn_2}{dt} = -A_{21}n_2 - B_{21}Pn_2 + B_{12}(1 - n_2)P$$

где P – оптическая накачка, т. е. число фотонов, падающих на атом в единицу времени. Стационарное (т.е. для $dn_2/dt = 0$) решение такого уравнения имеет вид:

$$n_{20} = \frac{B_{12}P}{A_{21} + 2B_{12}P}$$

Нетрудно заметить, что при слабых накачках т.е. когда $B_{12}P \ll A_{21}$, населенность возбужденного состояния является линейной функцией накачки: $n_{20} = B_{12}P/A_{21}$, а при очень больших накачках – насыщается до значения $n_{20} = 1/2$ [см. пунктирную кривую на рис. 1(b)]. Динамика населенности при слабых накачках характеризуется экспоненциальным нарастанием после включения накачки: до стационарного уровня n_{20} :

$$n_2(t) = n_{20}(1 - e^{-A_{21}t})$$

[пунктирная кривая на рис. 1(a)], и экспоненциальным затуханием после ее выключения:

$$n_2(t) = n_{20}e^{-A_{21}t}.$$

Именно такие закономерности наблюдаются в кинетике люминесценции атомов и других квази-двухуровневых систем.

Если же вместо статистического описания, рассмотреть резонансное взаимодействие двухуровневой системы с электромагнитным полем световой волны, то получится принципиально иная картина.

Стационарные состояния двухуровневой системы описываются волновыми функциями (собственными функциями, φ_{0i}), являющимися решением уравнения Шредингера:

$$i\hbar \frac{d\varphi_0}{dt} = H_0\varphi_0,$$

где H_0 – оператор энергии невозмущенной системы. При этом функции φ_{0i} удовлетворяют условию: $H_0\varphi_{0i} = E_i\varphi_{0i}$, где E_i – энергия i -того уровня, отсчитываемая от произвольного, но одинакового для всех уровней значения.

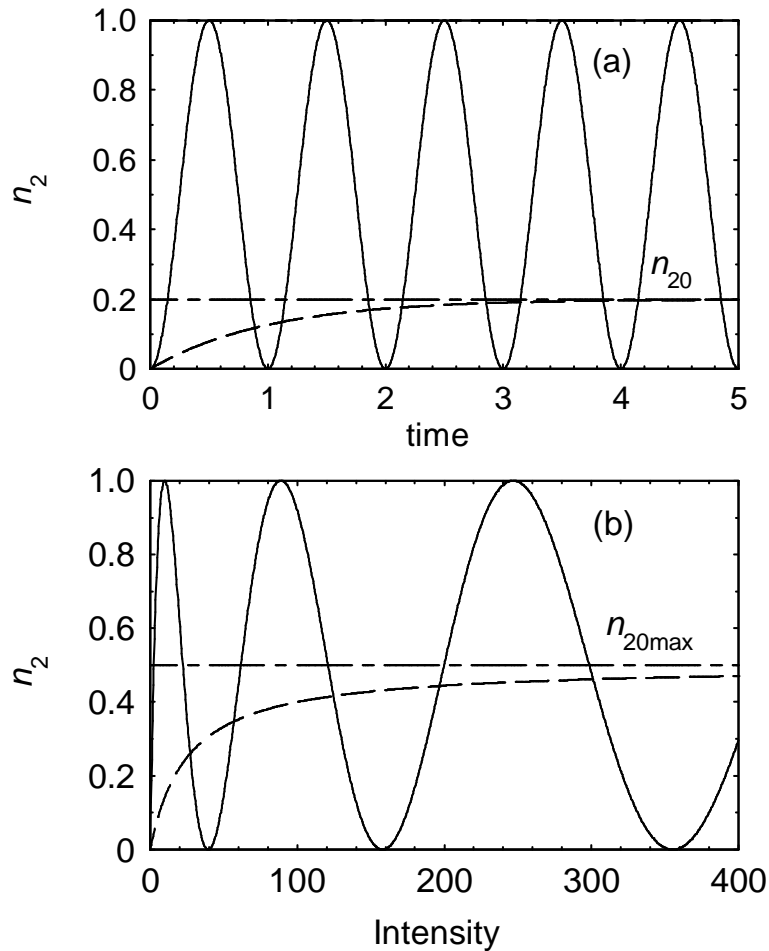


Рис. 1. Динамика населенности возбужденного состояния двухуровневой системе в поле световой волны. (а) – зависимость населенности от времени после включения возбуждающего излучения; (б) – зависимость максимальной населенности возбужденного состояния от энергии светового импульса. Сплошные кривые – когерентная динамика, пунктирные кривые – некогерентная динамика.

Собственные функции удовлетворяют условию ортонормировки, т.е.:

$$\int \varphi_{0i}^* \varphi_{0i} dq = 1 \quad \text{и} \quad \int \varphi_{0i}^* \varphi_{0k} dq = 0$$

(Здесь q – набор пространственных координат). Обычно в волновой функции удается выделить координатную часть, $\varphi_{0i}(q)$, и быстро осциллирующий временной множитель, т.е.:

$$\varphi_{0i} = \varphi_{0i}(q) e^{\frac{iE_i t}{\hbar}} .$$

Предполагается, что на систему действует световая волна, резонансная переходу между состояниями «1» и «2»:

$$E(t) = E_0(e^{-i\omega t} + e^{i\omega t}) = E_0(e^{-i\omega t} + cc),$$

где E – напряженность электрического поля волны, а аббревиатура « cc » означает комплексно сопряженный член. (Описание поля через комплексную амплитуду адекватно физическому описанию: $E(t) = E_0 \cos(\omega t)$, но более удобно для математических преобразований). Условием резонанса является равенство: $\omega = (E_2 - E_1)/\hbar$. Строго говоря, электромагнитное поле надо рассматривать как оператор, однако для интенсивных лазерных пучков, которые используются при наблюдении когерентных эффектов, вполне применимо классическое приближение, поэтому E в данном случае просто число. Гамильтониан двух-уровневой системы в поле волны приобретет вид: $\mathbf{H} = \mathbf{H}_0 + \mathbf{V}$, где $\mathbf{V} = \mathbf{d}^*E(t)$ – оператор возмущения ($\mathbf{d} = e^* \mathbf{r}$ – оператор дипольного момента).

По теории возмущений, зависящая от времени волновая функция состояния системы может в этом случае быть представлена в виде линейной комбинации собственных функций невозмущенного гамильтониана:

$$\varphi = a_1 \varphi_{01} + a_2 \varphi_{02}. \quad (1)$$

причем коэффициенты a_1 и a_2 должны удовлетворять условию нормировки:

$$|a_1|^2 + |a_2|^2 = 1.$$

Подставив эту функцию в уравнение Шредингера с новым гамильтонианом, можно после несложных преобразований получить систему уравнений для коэффициентов a_1 и a_2 :

$$\begin{cases} i\hbar \frac{da_1}{dt} = V_{11}a_1 + V_{12}a_2 \\ i\hbar \frac{da_2}{dt} = V_{21}a_1 + V_{22}a_2 \end{cases} \quad (2)$$

где $V_{ik} = \int \varphi_{0k}^* \mathbf{V} \varphi_{0i} dq$.

Нетрудно заметить при этом, что, поскольку оператор \mathbf{V} нечетный, то $V_{11} = V_{22} = 0$, и в правой части уравнений остаются только перекрестные члены. При вычислении V_{ik} , все зависящие от времени множители в выражениях для собственных волновых функций и для поля можно вынести из под знака интеграла. Их произведения будут иметь вид: $e^{\pm i(\omega \pm \omega_{12})t}$, где $\omega_{12} = (E_2 - E_1)/\hbar$.

В условиях резонанса ($\omega_{12} = \omega$), члены с $(\omega_{12} + \omega)$, осциллирующие на двойной частоте, усредняются, и остаются только не зависящие от времени множители $e^{\pm i(\omega - \omega_{12})t}$. Тогда, интегрирование по координатам дает:

$$V_{12} = V_{21} = \int \varphi_{02}(q)^* \mathbf{d} E_0 \varphi_{01}(q) dq = E_0 \int \varphi_{02}(q)^* \mathbf{d} \varphi_{01}(q) dq = d_{12} E_0,$$

где d_{12} – электрический дипольный момент перехода между состояниями 1 и 2.

Для случая строгого резонанса система (2) имеет простое решение:

$$\begin{cases} a_1 = \cos(V_{12}t/\hbar + \phi) \\ a_2 = \sin(V_{12}t/\hbar + \phi) \end{cases},$$

где ϕ – фазовая поправка, определяемая начальными условиями.

Физический смысл коэффициентов a_1 и a_2 проще всего понять, рассмотрев ситуацию, когда после прекращения действия некоторого возмущения система оказалась в суперпозиционном состоянии, описываемом выражением (1). При этом надо иметь в виду, что физически наблюдаемые величины, такие, например, как энергия или электрический дипольный момент, для системы, характеризуемой волновой функцией φ , по общему правилу квантовой механики определяются выражениями:

$$E_{cp} = \int \varphi^* \mathbf{H} \varphi dq \quad \text{и} \quad d_e = \int \varphi^* \mathbf{d} \varphi dq.$$

Если возмущение уже не действует, то оператором энергии является оператор \mathbf{H}_0 , и подстановка функции φ в первый интеграл дает, с учетом рассмотренных выше свойств собственных волновых функций,

$$E_{cp} = |a_1|^2 E_1 + |a_2|^2 E_2$$

Это означает, что величина $|a_i|^2$ представляет собой населенность i -того состояния.

Полученное таким же способом выражение для дипольного момента системы будет иметь вид:

$$d_e = (a_1^* a_2 e^{-i(E_1-E_2)t/\hbar} + a_2^* a_1 e^{-i(E_2-E_1)t/\hbar}) d_{12} \quad (3)$$

Каждый из коэффициентов a_i и a_2 может быть представлен в виде произведения вещественной и мнимой частей, т.е. $a_j = |a_j| \times e^{i\psi_j}$, что не противоречит условию нормировки этих коэффициентов. Тогда:

$$d_e = |a_1 a_2| d_{12} \cos(\omega_{12}t + \psi) \quad (3'),$$

где величина $\psi = \psi_2 - \psi_1$ определяется условиями формирования суперпозиционного состояния. Таким образом, произведение коэффициентов a_1 и a_2 задают амплитуду и фазу осцилляций электрического дипольного момента, соответствующего переходу «1 – 2».

Из вышеизложенного следует, что, если до включения электромагнитного поля $n_1 = 1, n_2 = 0$ ($\phi = \pi/2$), то после включения:

$$n_2(t) = |a_2|^2 = \frac{1}{2} (1 - \cos(\frac{2|V_{12}|}{\hbar} t)) \quad (4)$$

т.е. населенность возбужденного состояния периодически меняется во времени от 0 до 1 с частотой $\Omega = 2|V_{12}|/\hbar$.

Полученная таким образом динамика населенности радикально отличается от рассмотренной выше, полученной в рамках представлений о независимых процессах поглощения и испускания света двухуровневой системой, а именно:

1. Вместо плавного нарастания во времени и выхода на насыщение, населенность возбужденного уровня осциллирует, сохраняя постоянной амплитуду осцилляций [сплошная кривая на рис. 1(a)].
2. Амплитуда осцилляций не зависит от напряженности поля световой волны (т.е. от ее мощности). Увеличение напряженности приводит только к увеличению частоты осцилляций Ω .
3. Если в первой модели предельное значение населенности верхнего уровня составляет 1/2, то здесь величина n_2 регулярно принимает значение 1, соответствующее полной инверсии населенности [сплошная кривая на рис. 1(b)].

Причина радикальных расхождений между предсказаниями двух моделей заключается в том, что, в первой модели не предполагается сохранение фазовых соотношений между волной и состоянием двухуровневой системы. Если же фазовые соотношения не нарушаются, то поведение двухуровневой системы в резонансном поле аналогично колебаниям двух связанных классических осцилляторов, в которых энергия колебаний периодически перекачивается от одного осциллятора к другому и обратно. В данном случае роль осцилляторов играют двухуровневая система и электромагнитное поле. Осциллирующее поведение двухуровневой системы в резонансном поле принято называть оптической нутацией или осцилляциями Раби, а частоту осцилляций, Ω , - частотой Раби.

В том случае, когда огибающая электромагнитной волны не является константой, а представляет собой прямоугольный импульс длительностью Δt , то населенность верхнего состояния после окончания импульса жестко связана с фазой гармонической функции в выражении (4), соответствующей моменту окончания импульса, т.е. с величиной

$$S = 2|V_{12}|\Delta t/\hbar = 2 d_{12} E_0 \Delta t/\hbar,$$

условно называемой площадью импульса. В частности, при $S = \pi$ (π -импульс), происходит полная инверсия населенностей ($n_2 = 1$), а при $S = 2\pi$ система снова оказывается в основном состоянии. Нетрудно показать, что такая закономерность будет сохраняться и при произвольной форме огибающей светового импульса, $f(t)$, если под площадью импульса понимать величину:

$$S = \frac{2d_{12}E_0}{\hbar} \int f(t)dt .$$

Измеряя зависимость населенности от мощности светового импульса (т.е. от величины E_0^2), можно снова получить осцилляции Раби, но уже не во временном, а в энергетическом масштабе (см. Рис. 1b).

Таким образом, поведение изолированной двухуровневой системы в резонансном электромагнитном поле отчетливо демонстрирует нетривиальные проявления процесса когерентного взаимодействия системы со световой волной.

3. Резонансное взаимодействие света с ансамблем двухуровневых систем [3,4].

3.1. Матрица плотности. Населенность и поляризация.

На практике, как правило, исследуется не одна двухуровневая система, а ансамбль, содержащий большое число таких систем. В большинстве случаев, эти системы оказываются практически идентичными, т.е. собственные состояния каждой из них определяются одним и тем же невозмущенным гамильтонианом H_0 . Кроме того, предполагается, что взаимодействием между системами в ансамбле можно пренебречь, поскольку оно существенно слабее, чем взаимодействие со светом. (Типичный пример такого ансамбля – разреженный атомный газ). В общем случае, двухуровневые системы находятся в суперпозиционных состояниях, описываемых волновой функцией типа (1), но при этом коэффициенты a_1 и a_2 для разных систем могут иметь различные, в том числе и случайные, значения. Это означает, что описание состояния ансамбля в целом возможно только путем задания некоторых усредненных характеристик.

Поскольку, как следует из материала предыдущего раздела, значения физически наблюдаемых величин определяются бинарными произведениями коэффициентов при собственных волновых функциях, то именно эти произведения и требуется усреднять. При этом, если иметь в виду возможность некоторого разброса собственных значений энергий двухуровневых систем в ансамбле, то при усреднении следует учитывать множители вида $e^{-iE_j t}$ при координатных частях волновых функций.

Такое усреднение приводит к формированию матрицы вида:

$$\rho = \begin{vmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} \\ \rho_{21} & \rho_{22} \end{vmatrix},$$

получившей название *матрицы плотности*. Каждый элемент матрицы плотности, ρ_{jk} , представляет собой усредненное по ансамблю произведение соответствующих множителей, т.е:

$$\rho_{jk} = \frac{1}{N} \sum_N a_j^* e^{iE_j t} a_k e^{-iE_k t},$$

где N – число двухуровневых систем в ансамбле.

Диагональные элементы матрицы плотности определяют среднюю по ансамблю населенность соответствующего состояния. Действительно:

$$\rho_{ii} = \frac{1}{N} \sum_N a_i^* a_i e^{-iE_i t/\hbar} e^{iE_i t/\hbar} = \frac{1}{N} \sum_N a_i^* a_i = \frac{1}{N} \sum_N n_i.$$

Для недиагональных элементов получается следующее выражение:

$$\rho_{ik} = \frac{1}{N} \sum_N a_i^* a_k e^{-iE_i t/\hbar} e^{iE_k t/\hbar} = \frac{1}{N} \sum_N a_i^* a_k e^{-i(E_i - E_k)t/\hbar}.$$

Сумма недиагональных элементов матрицы плотности представляет собой поляризацию ансамбля, p_{12} , т.е. усредненную по ансамблю относительную величину дипольного момента двухуровневой системы. Действительно, с учетом изложенного в предыдущем разделе [см. формулы (3) и (3')]:

$$\rho_{12} + \rho_{21} = \frac{2}{d_{12} N} \sum_N |a_1 a_2| \cos(\omega_{12} t + \psi) = p_{12}.$$

Поскольку недиагональные элементы связаны между собой соотношением: $\rho_{21} = \rho_{12}^*$, то поляризация однозначно задается любым из этих элементов, например ρ_{12} .

При отсутствии внешнего поля поляризация осциллирует во времени с частотой, равной частоте перехода, ω_{12} , и имеет максимальную амплитуду, равную единице, при выполнении двух условий:

- а) $|a_1| = |a_2| = 1/\sqrt{2}$;
- б) фазы колебаний, ψ , всех дипольных моментов ансамбля совпадают.

Поведение сфазированного ансамбля двухуровневых систем существенно отличается от поведения случайно приготовленного ансамбля.

Если распределение фаз колебаний отдельных дипольных моментов является случайным, то поляризация, естественно, равна нулю и когерентное излучение отсутствует. Волны, испущенные разными диполями, складываются с произвольными фазами, что приводит к появлению некогерентного излучения, мгновенная амплитуда которого пропорциональна флуктуации числа случайно сфазированных диполей, т.е. $N^{1/2}$, а интенсивность пропорциональна N . Такое излучение не имеет определенной направленности. Совокупность указанных характеристик, т.е. отсутствие когерентности и направленности, а также линейная зависимость интенсивности от числа излучающих частиц, полностью соответствует характеристикам спонтанного излучения.

При наличии ненулевой поляризации в ансамбле формируется макроскопический электрический дипольный момент $D = p_{12}Nd_{12}$, осциллирующий на частоте ω_{12} . Такой ансамбль должен излучать когерентную электромагнитную волну, амплитуда которой определяется величиной дипольного момента и, тем самым, пропорциональна числу излучающих систем в ансамбле, N . Интенсивность когерентного излучения будет, соответственно, пропорциональна N^2 . Квадратичная зависимость интенсивности излучения от числа излучающих частиц радикально отличает когерентное излучение от спонтанного. Другим отличием когерентного излучения является наличие четко выраженной направленности. Действительно, если пространственная протяженность ансамбля превышает длину волны излучения, то, в соответствии с принципом Гюйгенса, когерентное излучение ансамбля должно распространяться перпендикулярно плоскости слоя, в котором колебания поляризации имеют одинаковую фазу.

3.2. Взаимодействие когерентного света с ансамблем.

Оптические уравнения Блоха.

Наиболее очевидный способ приготовления сфазированного ансамбля двухуровневых систем – воздействие на него когерентным оптическим излучением, поскольку, как отмечалось в разделе 2, существует жесткая связь между фазой колебаний дипольного момента системы и фазой резонансной электромагнитной волны. При этом для пространственно протяженного ансамбля фаза колебаний волны зависит не только от времени, но и от пространственных координат точки ансамбля, т.е. в общем виде электромагнитная волна должна быть представлена следующим образом:

$$E(t) = E_0(e^{-i(\omega t + \vec{k}\vec{R})} + cc) \quad (5),$$

где \vec{k} – волновой вектор излучения, а \vec{R} – радиус-вектор координаты точки. В дальнейшем рассмотрении будет предполагаться, что ансамбль двухуровневых систем представляет собой плоский слой, т.е. фаза волны может меняться только в плоскости слоя. В этом случае, \vec{k} представляет собой проекцию волнового вектора излучения на плоскость слоя. Для полупроводниковых

гетероструктур такой подход, сильно упрощающий изложение, вполне оправдан, поскольку толщины слоев в этих структурах, как правило, существенно уступают длине волны света.

Для описания взаимодействия ансамбля с электромагнитной волной используется записанное в матричной форме уравнение Лиувилля [6]:

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [\mathbf{H}, \rho],$$

получаемое с помощью уравнения Шредингера. В правой части уравнения стоит коммутатор матрицы возмущенного Гамильтониана, построенного на собственных волновых функциях, и матрицы плотности. Используя свойства коммутатора и правила перемножения матриц, а также преобразования, аналогичные преобразованиям, сделанным в разделе 2, можно получить систему уравнений для населенности, n_2 и определяющего поляризацию недиагонального элемента, ρ_{12} :

$$\begin{cases} i\hbar \frac{d\rho_{12}}{dt} = \rho_{12}(E_2 - E_1) - V_{12}(1 - 2n_2) \\ i\hbar \frac{dn_2}{dt} = V_{12}\rho_{12}^* - \rho_{12}V_{12}^* \end{cases} \quad (6),$$

где возмущение V_{12} определяется так же, как в выражениях (2), но с учетом пространственного распределения фазы волны, описанного выражением (5).

Приведенная система, называемая системой оптических уравнений Блоха, в общем виде не имеет аналитического решения. Тем не менее, даже не решая систему, можно сделать некоторые выводы о поведении поляризации и населенности ансамбля в резонансном поле световой волны. В частности, после прекращения воздействия света ($V_{12} = 0$), первое уравнение превращается в уравнение гармонических осцилляций с частотой

$$\omega_{12} = (E_2 - E_1) / \hbar,$$

а решением второго уравнения является условие $n_2 = \text{const}$. Т.е. после прекращения возбуждения населенность должна оставаться постоянной во времени, а поляризация – испытывать незатухающие осцилляции на собственной частоте перехода “1 - 2”. Отсутствие затухания является следствием того, что при выводе уравнений не учитывались релаксационные процессы в ансамбле.

Затухание поляризации и населенности во времени описывается феноменологически путем введения в уравнения Блоха (6) релаксационных членов вида: $i\hbar\rho_{12}/T_p$ – в первое уравнение и $i\hbar n_2/T_1$ – во второе. Время T_1 – характеризует процесс энергетической релаксации или релаксации населенностей. (В ЭПР-спектроскопии для этого процесса используется термин

«продольная релаксация»). К затуханию поляризации приводят не только процессы релаксации населенностей, меняющие соотношение коэффициентов a_1 и a_2 , но и изменение во времени фазовых соотношений между колебаниями дипольных моментов двухуровневых систем ансамбля – фазовая (поперечная) релаксация, характеризуемая временем T_2 . (Источником фазовой релаксации могут быть, например, упругие столкновения между атомами в газе). В итоге скорость релаксации поляризации, т.е. величина $1/T_p$, определяется суммой скоростей всех релаксационных процессов, т.е.: $1/T_p = 1/T_1 + 1/T_2$. В этом случае из решений уравнений Блоха будет следовать, что после прекращения возбуждения:

$$p_{12}(t) = p_{12}(0)e^{-i\omega_{12}t} e^{-t/T_p} \quad \text{и} \quad n_2(t) = n_2(0)e^{-t/T_1}.$$

Характер пространственного распределения поляризации и населенности, создаваемых пространственно однородной световой волной, описываемой выражением (5), можно определить и не решая уравнения Блоха. В уравнении для ρ_{12} зависимость от координат содержится только в V_{12} , поэтому решение уравнения должно воспроизводить эту зависимость и, следовательно: $\rho_{12} \propto e^{-ikR}$. В то же время, в уравнение для населенности входят произведения вида: $V_{12}p_{12}^*$, пропорциональные $e^{-ikR} \times e^{ikR} = 1$, т.е. населенность оказывается не зависящей от координат в плоскости слоя.

Решение уравнений Блоха для случая слабого оптического возбуждения (т.е. когда ρ_{12} и n_2 много меньше единицы) можно существенно упростить, если последовательно вычислять эти величины в возрастающих порядках теории возмущений. Как следует из общего вида уравнений Блоха, ненулевые поправки к ρ_{12} (т.е. к поляризации) будут возникать только в нечетных порядках, а для населенности – в четных. В этом случае система уравнений Блоха, записанная с учетом процессов релаксации, примет вид:

$$\begin{cases} i\hbar \frac{d\rho_{12}^{(1)}}{dt} = \rho_{12}^{(1)}(E_2 - E_1) - V_{12} + i\hbar\rho_{12}^{(1)}/T_p \\ i\hbar \frac{dn_2^{(2)}}{dt} = V_{12}\rho_{12}^{(1)*} - \rho_{12}^{(1)}V_{12}^* + i\hbar n_2^{(2)}/T_1 \\ i\hbar \frac{d\rho_{12}^{(3)}}{dt} = \rho_{12}^{(3)}(E_2 - E_1) + 2V_{12}n_2^{(2)} + i\hbar\rho_{12}^{(3)}/T_p \end{cases} \quad (7)$$

В такой системе отсутствуют зацепляющиеся переменные, и она может быть решена последовательно для $\rho_{12}^{(1)}$, $n_2^{(2)}$, и для поправки третьего порядка, $\rho_{12}^{(3)}$. Следует при этом подчеркнуть, что в простейшем случае взаимодействия ансамбля с плоской монохроматической волной учет поправки третьего порядка не меняет пространственных и временных характеристик поляризации, а влияет только на ее амплитуду. В то же время, именно использование этой

поправка позволяет описать специфические эффекты, возникающие при взаимодействии ансамбля с двумя и большим числом когерентных световых пучков. Рассмотрению таких эффектов посвящены следующие разделы этой главы.

3.3. Эффект четырехволнового смешения.

При падении на плоский слой, содержащий ансамбль двухуровневых систем, двух световых пучков (см. рис. 2), действующее на ансамбль поле складывается, соответственно, из двух полей:

$$E_1(t) = E_{10}(e^{-i(\alpha + \bar{k}_1 \bar{R})} + cc) \quad \text{и} \quad E_2(t) = E_{20}(e^{-i(\alpha + \bar{k}_2 \bar{R})} + cc).$$

Как правило, в экспериментах волновые векторы обоих полей лежат в одной плоскости (плоскости падения), поэтому скалярное произведение волнового вектора и радиуса вектора можно заменить произведением координаты точки слоя по оси, x , лежащей в плоскости падения и проекции волнового вектора на эту ось. Начало координат удобно выбрать так, чтобы фазы колебаний первой и второй волн в точке $x = 0$ совпадали.

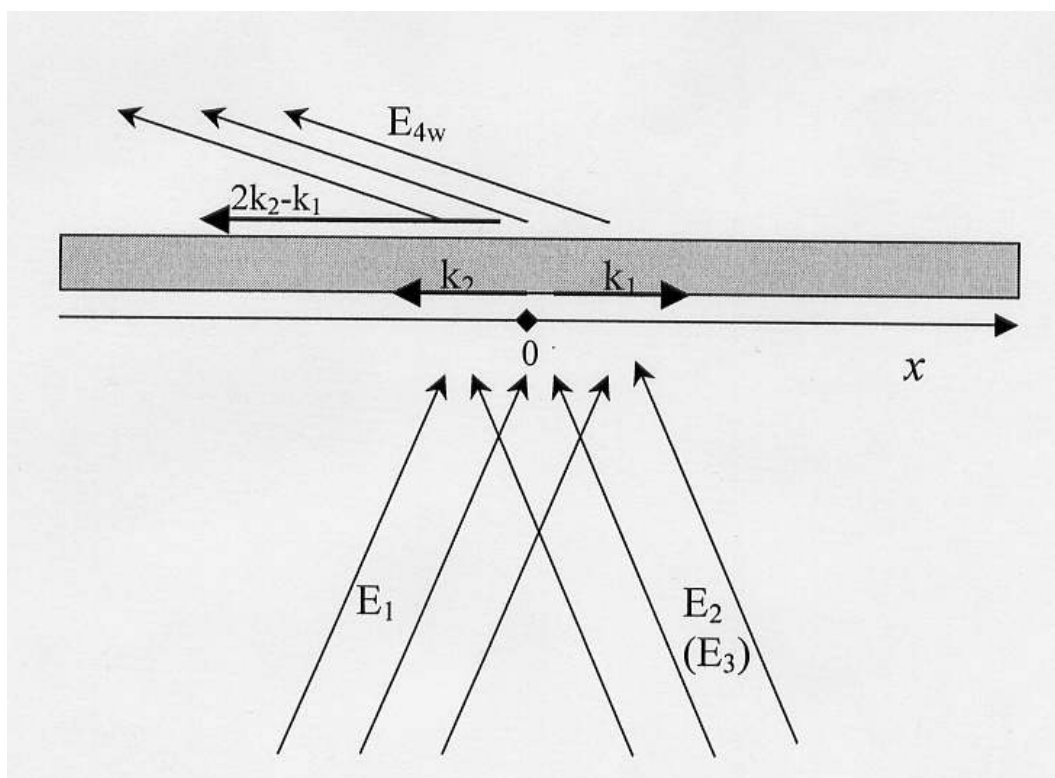


Рис. 2. К формированию сигнала четырехволнового смешения (E_{4w}) в двухпучковом режиме.

В соответствии с первым уравнением системы (7), каждый световой пучок создает в слое волну поляризации первого порядка волновой вектор

которой равен проекции волнового вектора света на ось x . При отсутствии взаимодействия между двухуровневыми системами, поляризации, созданные разными пучками, являются независимыми, поэтому полная поляризация первого порядка представляет собой алгебраическую сумму этих волн, т.е.:

$$p^{(1)} = p_1^{(1)}(t)e^{-ik_1x} + p_2^{(1)}(t)e^{-ik_2x}.$$

Пространственное распределение населенности, $n_2^{(2)}$, определяемое, согласно (7), произведениями, типа $V_{12}^* \rho_{12}^{(1)}$, характеризуется в данном случае суммой членов с коэффициентами $e^{-ik_lx} \times e^{ik_mx}$, где каждый индекс l и m может принимать значения «1» и «2». Таким образом, в населенности будут присутствовать как не меняющаяся в пространстве компонента, получающаяся при произведении экспонент с одинаковыми индексами, так и синусоидально модулированные вдоль оси x компоненты (решетки населенности), характеризуемые множителями $e^{-i(k_1-k_2)x}$ и $e^{-i(k_2-k_1)x}$. Это означает, что, хотя поляризации между собой не взаимодействуют, перекрестное воздействие световых пучков на созданные ими поляризации приводит к нетривиальному пространственному перераспределению населенности, т.е. фактически к изменению свойств среды.

Наличие пространственной модуляции населенности отчетливо проявится в реакции ансамбля на третий когерентный пучок с проекцией волнового вектора k_3 . Под действием третьего пучка, в поправке третьего порядка к поляризации, должны возникнуть компоненты, содержащие экспоненциальные множители вида: $e^{-i(k_1-k_2+k_3)x}$ и $e^{-i(k_2-k_1+k_3)x}$. Это означает, что в плоскости слоя, помимо непосредственно созданных светом волн поляризации с векторами k_1 , k_2 и k_3 будут распространяться волны поляризации с соответствующими комбинациями волновых векторов.

Как отмечалось выше, поляризация характеризует макроскопический электрический дипольный момент, колеблющийся на оптической частоте. Согласно представлениям классической электродинамики, такой диполь должен излучать в пространство электромагнитные волны, причем, в соответствии с законом сохранения импульса, направление излучения жестко задается волновым вектором поляризации. Таким образом, созданная тремя пучками поляризация третьего порядка станет источником излучения, направление которого не совпадает с падающими пучками. В частности, если волновые вектора второго и третьего пучков совпадают ($k_2 = k_3$), то в поляризации третьего порядка появятся компоненты с векторами $(2k_2 - k_1)$ и (k_1) .

Эффект появления когерентного излучения в указанных направлениях при воздействии трех когерентных пучков наблюдался экспериментально и получил название эффекта *четырёхволнового смешения*. Смысл этого названия заключается в том, что воздействие на среду трех световых пучков (трех волн)

порождает четвертую световую волну, которая не совпадает по направлению ни с одной из действующих волн. Внешне, эффект четырехволнового смешения (Four Wave Mixing - FWM) выглядит как результат дифракции третьего пучка на амплитудной решетке, созданной в слое двумя предыдущими пучками. Особенно наглядно это видно, если волновые вектора первых двух пучков равны по величине и противоположны по направлению. Интерференция пучков приведет к образованию в слое стоячей электромагнитной волны с периодом π/k . Результатом воздействия этой волны на ансамбль двухуровневых систем будет соответствующая пространственная модуляция населенности, т.е. фактически модуляция оптических характеристик слоя. Плоский слой с синусоидально модулированными характеристиками представляет собой фазовую решетку, дифракция третьего пучка на которой приведет к появлению излучения в приведенных выше направлениях.

Такой процесс действительно возможен, но он принципиально отличается от рассматриваемого в настоящем разделе. Наиболее наглядно это отличие проявляется в том случае, когда световые пучки сформированы в виде коротких импульсов, длительность которых существенно меньше времен релаксации в ансамбле двухуровневых систем. При условии совпадения во времени импульсов E_1 и E_2 , действительно возможны их интерференция, образование стоячей волны и дифракция третьего пучка на созданной стоячей волной пространственной модуляции населенности. Если же первый и второй пучки во времени не перекрываются, то условия для интерференции отсутствуют, и решетка населенности таким способом образоваться не может.

В эффекте четырехволнового смешения решетка населенностей образуется за счет взаимодействия электрического поля одного пучка с *поляризацией*, созданной другим пучком. Поляризация может существовать в течение времени T_p после прекращения возбуждения, поэтому в данном случае условие совпадения первого и второго импульсов во времени не является обязательным (см. рис. 3). Амплитуда решетки населенности будет при этом пропорциональна величине $p_1^{(1)}$ в момент прихода второго импульса, т.е.

$$n^{(2)} \propto p_1^{(1)}(t_{21}) = p_1^{(1)}(t_1)e^{-t_{21}/T_p}.$$

Амплитуда решетки задает, в соответствии с третьим уравнением системы (7), величину компоненты поляризации третьего порядка, излучающей в направлениях четырехволнового смешения. Для интенсивности излучения, пропорциональной *квадрату* поляризации, будет выполняться соотношение:

$$I \propto (p^{(3)})^2 \propto e^{-2t_{21}/T_p}.$$

Это означает, что, регистрируя зависимость интенсивности сигнала четырехволнового смешения от временного интервала между первым и вторым импульсами, t_{21} , можно определить время фазовой релаксации ансамбля T_p [рис. 4(а)].

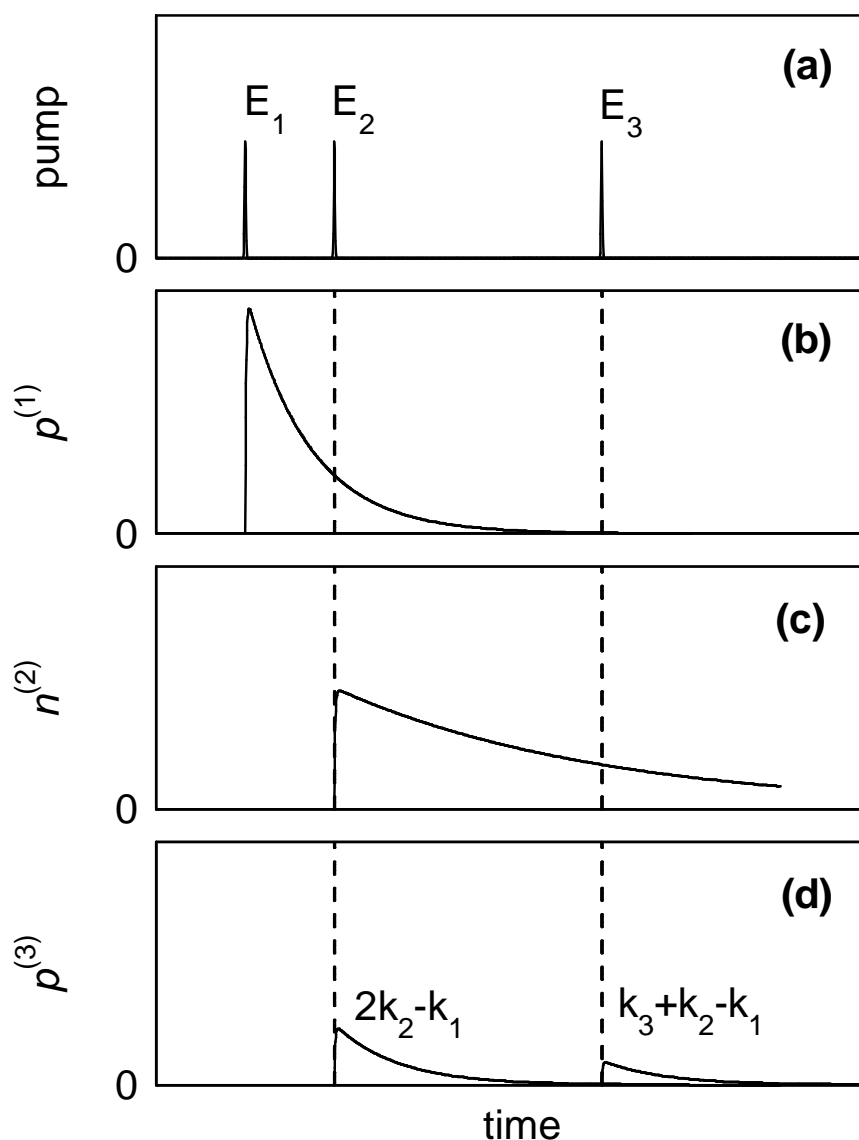


Рис. 3. Формирование сигналов четырехволнового смешения в реальном времени. (a) – световые импульсы, (b) – амплитуда поляризации первого порядка, созданной первым импульсом; (c) – амплитуда решетки населенностей, (d) – амплитуда сигналов четырехволнового смешения, созданных вторым и третьим световыми импульсами.

На временном промежутке между вторым и третьим импульсами, t_{32} , происходит релаксация решетки населенности: $n_2^{(2)} = n_2^{(2)}(t_{32})e^{-t_{32}/T_1}$, как это показано на рисунке 3. Это приведет к соответствующему уменьшению амплитуды поляризации третьего порядка, создаваемой на решетке населенностей третьим импульсом, поэтому для интенсивности четырехволнового смешения должно выполняться соотношение:

$$I = I(t_2)e^{-2t_{32}/T_1}.$$

Таким образом, меняя интервал между вторым и третьим импульсами, можно определить время энергетической релаксации двухуровневых систем T_1 (Рис.4b).

В двухимпульсных экспериментах по четырехволновому смешению источником регистрируемого излучения является поляризация третьего порядка, созданная на решетке населенности вторым световым пучком. Как отмечалось выше, излучение может наблюдаться в двух направлениях: $(2k_2 - k_1)$ и (k_1) . Второе направление неудобно для регистрации, поскольку совпадает с направлением первого пучка, поэтому стандартной является регистрация именно в направлении $(2k_2 - k_1)$. При одновременном приходе первого и второго пучков, первый пучок также создает поляризацию третьего порядка, излучающую в направлениях $(2k_1 - k_2)$ и (k_2) . Однако при наличии временного интервала между первым и вторым пучками, первый пучок уже не может играть роль третьего, поскольку в момент его прихода решетка населенностей в слое отсутствует, и излучение в указанных направлениях наблюдаться не будет.

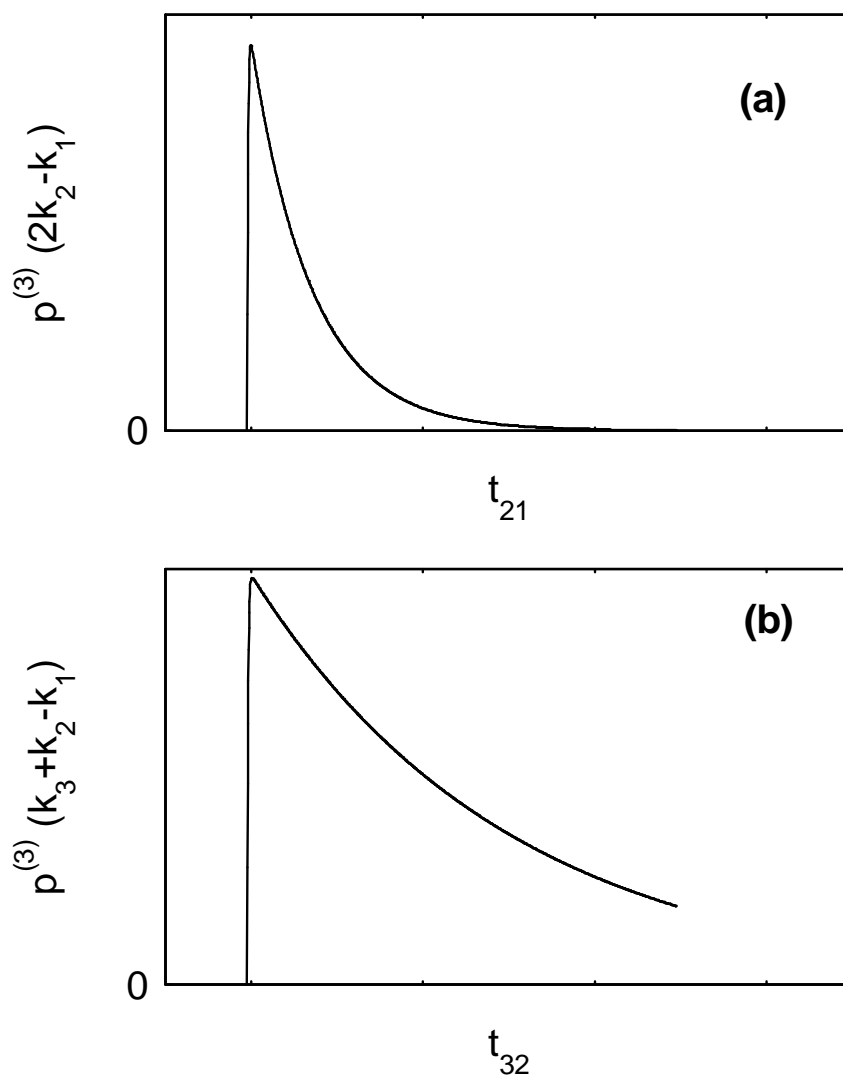


Рис.4. Зависимость амплитуды сигнала четырехволнового смешения от задержки между первым и вторым импульсами (a) и между вторым и третьим импульсами (b).

Резюмируя содержание этого раздела, следует подчеркнуть, что использование эффекта четырехволнового смешения дает уникальную возможность одновременного определения времен фазовой и энергетической релаксации двухуровневых систем ансамбля. В особенности это существенно для фазовой релаксации, вообще не проявляющейся в некогерентных процессах поглощения и испускания света. Интерес к фазовой релаксации квантовых систем в последнее время заметно усилился в связи с обсуждением возможности производства квантовых вычислительных операций, в которых роль носителя информации должна играть фаза суперпозиционного состояния таких систем.

3.4. Фотонное эхо.

В предыдущем разделе был рассмотрен эффект четырехволнового смешения на ансамбле идентичных двухуровневых систем. Для реальных двухуровневых систем условие полной идентичности практически никогда не выполняется. Например, атомы в газе движутся с разными скоростями и в разных направлениях. Доплеровский сдвиг, связанный с этим движением, приводит к случайному разбросу частот переходов (неоднородное уширение спектральной линии). В твердом теле источником неоднородного уширения являются случайные вариации кристаллических полей, обусловленные дефектами структуры. При наличии неоднородного уширения, для произвольно выбранной двухуровневой системы будет существовать некоторая расстройка резонанса с монохроматической электромагнитной волной: $\Delta\omega = \omega_{21} - \omega$, причем во всех рассматриваемых здесь случаях величина расстройки много меньше собственной частоты колебаний ω_{21} . Решение уравнения Блоха (7) для поляризации первого порядка при условии $V_{12} \neq 0$ дает, как и в случае строгого резонанса, функцию, осциллирующую с частотой волны, ω . Наличие расстройки приводит только к некоторому уменьшению амплитуды поляризации. Это означает, что когерентное возбуждение неоднородного ансамбля создает сфазированную по всему ансамблю поляризацию.

В то же время, после прекращения возбуждения ($V_{12} = 0$) поляризация каждой двухуровневой системы будет осциллировать на собственной частоте перехода ω_{21} . При наличии неоднородного уширения это приведет к дефазировке поляризации ансамбля за время $T_2^* \approx 1/\Delta\omega_{cp}$, где $\Delta\omega_{cp}$ – среднестатистический разброс частот ансамбля. В этом случае, хотя каждая двухуровневая система еще сохраняет когерентно осциллирующий дипольный момент, но из-за различия частот осцилляций их фазы разбегаются, и суммарная поляризация ансамбля исчезает. В итоге поляризация неоднородного ансамбля затухает за время T_2^* , которое может оказаться существенно меньшим времени релаксации дипольного момента отдельной двухуровневой системы.

В отличие от рассмотренной в разделе 3.2 *необратимой* дефазировки систем ансамбля, характеризуемой временем T_p , поляризацию, разрушенную

вследствие различия частот, можно, в принципе, восстановить, поэтому время T_2^* принято называть временем *обратимой* фазовой релаксации. Один из вариантов такого восстановления реализуется в эффекте *фотонного эха*.

Фотонное эхо возникает при наблюдении четырехволнового смещения на неоднородно уширенном ансамбле двухуровневых систем. Эксперименты могут производиться и в двухимпульсном, и в трехимпульсном режимах. Ниже для простоты будет рассмотрен только двухимпульсный режим. С учетом содержания предыдущего раздела, перенесение полученных закономерностей на трехимпульсный режим не составляет большого труда. При описании процесса формирования фотонного эха неоднородно уширенный ансамбль, состоящий из большого числа двухуровневых систем, удобно представить как набор подансамблей, каждый из которых равномерно распределен по всему слою. Внутри подансамбля двухуровневые системы полностью идентичны, тогда как разные подансамбли имеют разные частоты резонансного перехода. Два световых пучка формируют в каждом из подансамблей решетку населенностей, взаимодействуя с которой, второй пучок создаст поляризацию третьего порядка, порождающую когерентное излучение в направлениях четырехволнового смещения, как это было описано в предыдущем разделе. Интенсивность когерентного излучения всего ансамбля будет при этом зависеть от того, с какими фазами сложатся пучки, испущенные разными подансамблями.

Для определения фазовых соотношений достаточно выбрать два подансамбля «а» и «b», собственные частоты которых различаются на небольшую величину $\Delta\omega$, т.е. $\omega_a = \omega_b$, а

$\omega_b = \omega_a + \Delta\omega$. Как и в предыдущем разделе, предполагается, что на ансамбль падают два световых пучка с волновыми векторами: $k_1 = k$ и $k_2 = -k$. Пучки сформированы в виде коротких импульсов, причем второй импульс приходит через промежуток времени t_{12} после первого. Первый пучок создает в каждом из подансамблей волну поляризации первого порядка, взаимодействуя с которой, второй пучок порождает решетку населенности, имеющую период π/k . Максимумы населенности (т.е. узлы решетки) достигаются в тех точках, в которых фазы колебаний электромагнитной волны и волны поляризации в момент прихода второго пучка совпадают. Если выбрать за начало координат положение одного из максимумов для подансамбля «а», то x координаты двух соседних максимумов будут: $-\pi/k$ и π/k .

Фаза колебаний поляризации подансамбля «b» будет в тех же точках превышать фазу электромагнитной волны на величину $\Delta\omega t_{12}$. Координата нулевого узла решетки населенности в подансамбле «b» будет определяться условием: $-2kx_{0b} = \Delta\omega t_{12}$, т.е. $x_{0b} = -\Delta\omega t_{12}/2k$. Поскольку период решетки в подансамбле «b» также равен π/k , то и все остальные узлы решетки окажутся смещенными в область отрицательных значений на ту же величину (см. рис. 5). Как уже отмечалось выше, взаимодействие второй электромагнитной волны с решеткой населенности породит в каждом подансамбле по две волны поляризации третьего порядка, характеризующиеся волновыми векторами:

$$k_{(3)} = 2k_2 - k_1 = -3k \text{ и } k_{(3)}' = k_1.$$

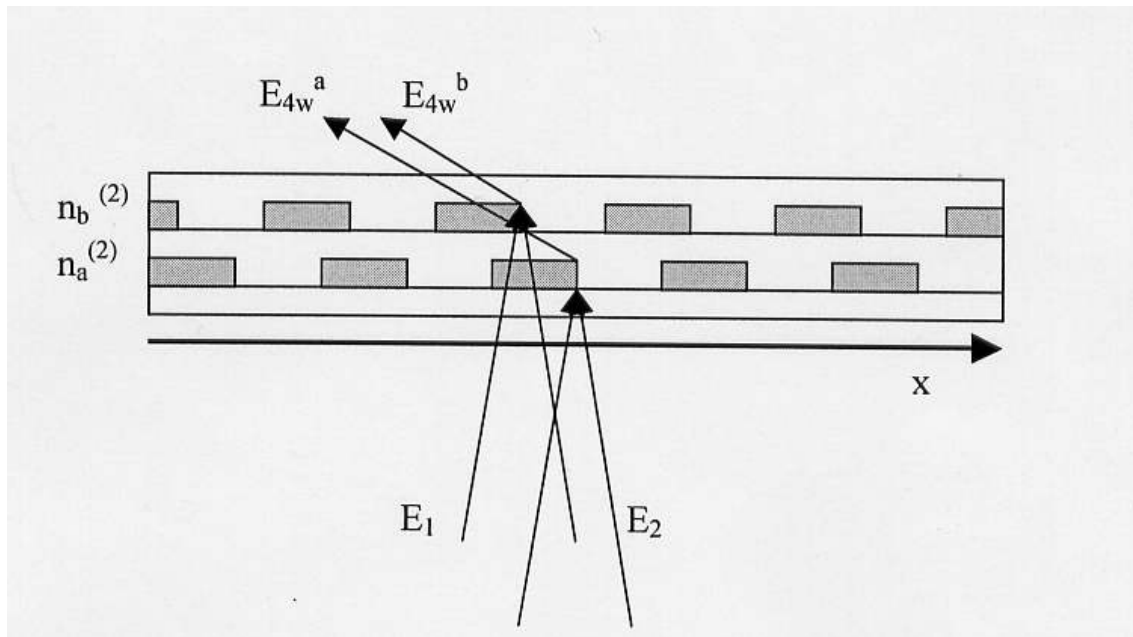


Рис. 5. К формированию сигнала двухимпульсного эха. Серыми прямоугольниками условно показаны периоды решетки населенностей в подансамблях «а» и «б».

Для направления k_3 разность фаз излучений подансамблей «b» и «a» будет состоять из следующих вкладов:

1. Разность фаз колебаний второй электромагнитной волны в точках $x = x_{0b}$ и $x = 0$: $\Delta\phi_1 = k x_{0b} = \Delta\omega t_{12}/2$;
2. Разность фаз поляризаций третьего порядка подансамблей «b» и «a», связанная со сдвигом решеток населенностей: $\Delta\phi_2 = 3k x_{0b} = -3\Delta\omega t_{12}/2$;
3. Текущий набег фазы за время $(t - t_2)$: $\Delta\phi_3 = \Delta\omega(t - t_2)$

Из получающегося в итоге выражения для полной разности фаз:

$$\Delta\phi_{ba}(t) = \Delta\phi_1 + \Delta\phi_2 + \Delta\phi_3 = \Delta\omega(t - t_2) - \Delta\omega t_{12},$$

вытекают два важных следствия. Во-первых, в момент прихода второго светового импульса ($t = t_2$) разность фаз поляризаций третьего порядка равна по величине разности фаз поляризаций первого порядка ансамблей «b», т.е. когерентность в поляризации третьего порядка в этот момент полностью отсутствует и эффект четырехволнового смешения не наблюдается.

Второе следствие заключается в том, что через промежуток времени, равный интервалу между первым и вторым импульсами, фазы поляризаций третьего порядка в двух подансамблях окажутся одинаковыми.

Поскольку момент совпадения фаз определяется только интервалом между первым и вторым импульсами и не зависит от частотной расстройки, то он соответствует *совпадению фаз поляризаций* третьего порядка всех

подансамблей. Отсюда следует, что через время $t - t_2 = t_{12}$ неоднородно уширенный ансамбль должен испустить в направлении $k_3 = 2k_2 - k_1$ когерентный световой импульс (рис. 6). Этот импульс и называется импульсом *фотонного эха*.

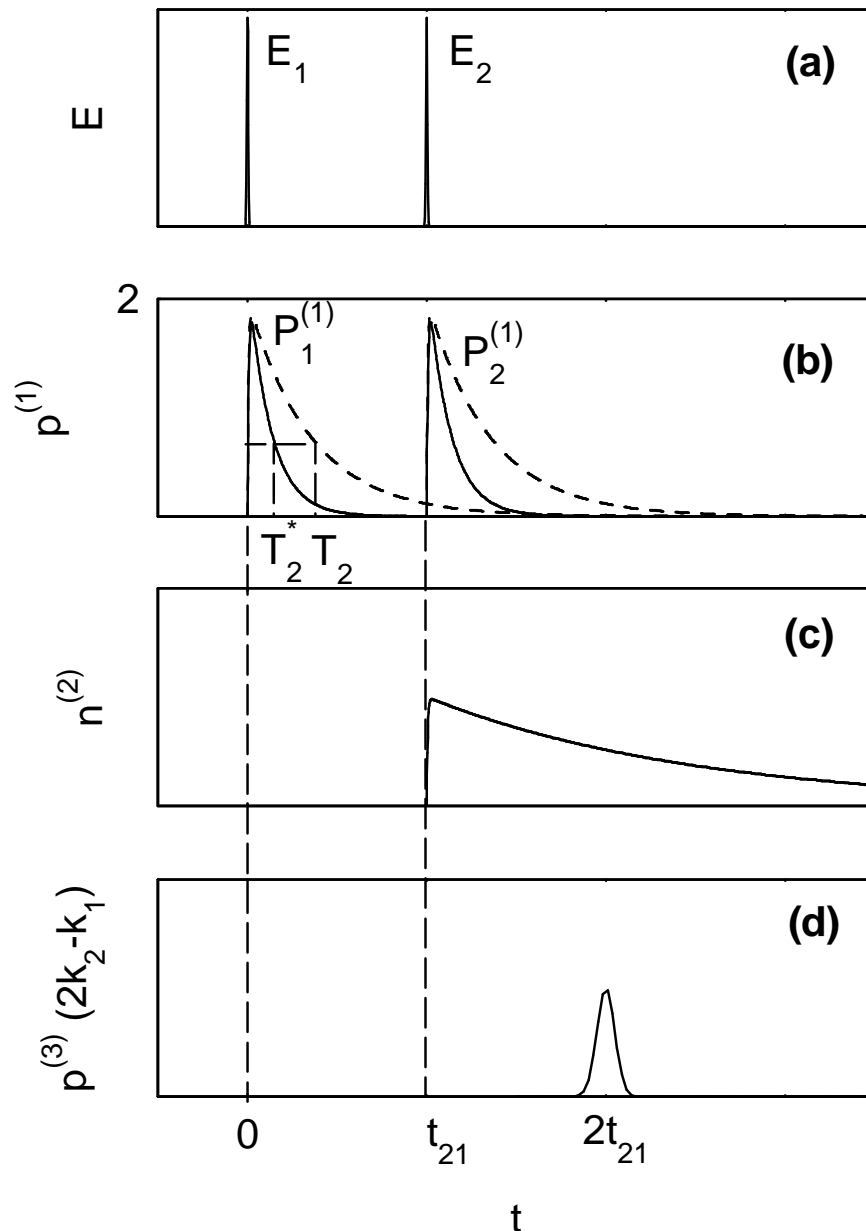


Рис.6. Временные диаграммы формирования сигнала эха. (а) – импульсы электромагнитного излучения; (б) – импульсы поляризации первого порядка (сплошные кривые – для всего ансамбля, пунктир – для резонансного подансамбля); (с) – кинетика решетки населенности, (d) – импульс эха.

Для второго направления четырехволнового смешения, $k_3' = k_1$, соотношение фаз поляризаций третьего порядка будет иметь вид: $\Delta\phi_{ba}(t)' = \Delta\omega(t - t_2) + \Delta\omega t_{12}$. В этом случае исходная (при $t = t_2$) разность фаз только накапливается во времени, т.е. в этом направлении не может наблюдаться не только сигнал четырехволнового смешения, но и сигнал эха.