

# **Когерентная спектроскопия полупроводниковых нано- и микроструктур**

**ЛЫСЕНКО Вадим Григорьевич**

*Institut für Angewandte Photophysik, TU Dresden, FRG*

*Институт проблем технологии микроэлектроники и особочистых  
материалов РАН, Черноголовка*

# Матрица плотности

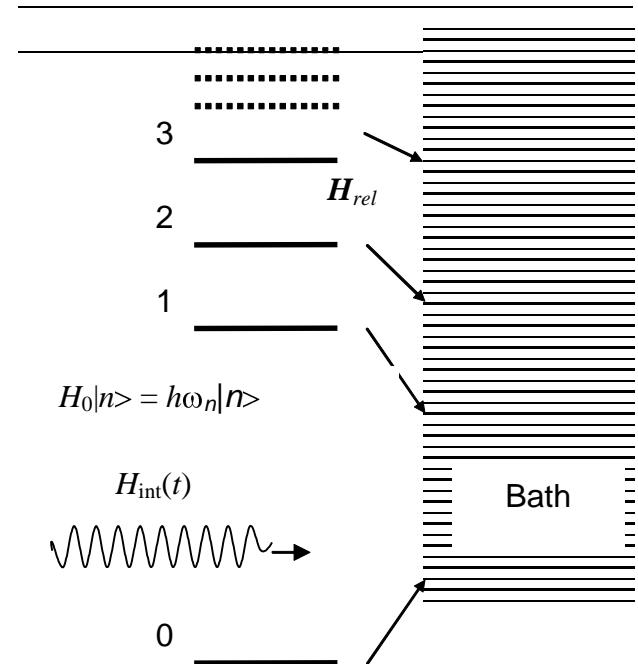
В некоторых случаях экситоны в полупроводниковых структурах можно рассматривать как переходы в двухуровневой системе

Рассмотрим **ансамбль двухуровневых систем**.

Статистические свойства ансамбля удобно описывать матрицей плотности:

$$\rho = \sum_j P_j |\psi_j\rangle\langle\psi_j|$$

где  $P_j$  – вероятность найти систему в состоянии  $|\psi_j\rangle$ .



Для многоуровневой системы имеющей основное состояние  $|0\rangle$  с энергией  $\hbar\omega_0$  и возбужденные состояния  $|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle\dots$  с энергиями  $\hbar\omega_1, \hbar\omega_2, \hbar\omega_3\dots$ , матрица плотности имеет вид

$$\rho = \begin{bmatrix} \rho_{00} & \rho_{01} & \rho_{02} & \dots \\ \rho_{10} & \rho_{11} & \rho_{10} & \dots \\ \rho_{20} & \rho_{21} & \rho_{22} & \dots \\ \dots & \dots & \dots & \dots \end{bmatrix}$$

## Матрица плотности: Свойства

Диагональные элементы матрицы плотности – вероятность найти систему в соответствующем состоянии, или населённость соответствующего уровня. В замкнутой многоуровневой системе диагональные элементы связаны соотношением:

$$\rho_{00} + \rho_{11} + \rho_{22} + \dots = 1$$

Недиагональные элементы описывают когерентность (суперпозиции) состояний.

### Пример

Для ансамбля двухуровневых систем состояние  $j$ -й системы:

$$|\psi_j(t)\rangle = c_{aj}(t)|a\rangle + c_{bj}(t)|b\rangle$$

Матрица плотности имеет вид

$$\rho = \sum_j P_j \begin{bmatrix} |c_{aj}|^2 & c_{bj}c_{aj}^* \\ c_{aj}c_{bj}^* & |c_{aj}|^2 \end{bmatrix}$$

где  $P_j$  – вероятность находиться в состоянии  $j$ .

Среднее значение (expectation value) любого оператора  $O$  выражается через:

$$\langle O \rangle = \text{Tr}\{O\rho\}$$

## Матрица плотности: Уравнение эволюции

Матрица плотности удовлетворяет уравнению Лиувиля:

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = (H\rho - \rho H) \quad (1)$$

где  $H = H_0 + H_{\text{int}} + H_{\text{rel}}$

Состояния невозмущенного Гамильтониана  $H_0$ :

$$H_0 |n\rangle = \hbar\omega_n |n\rangle.$$

Матричный элемент перехода между невозмущенными состояниями  $|n\rangle$  и  $|m\rangle$

$$\langle n | [H_0 \rho - \rho H_0] | m \rangle = \langle n | [\hbar\omega_n \rho - \rho \hbar\omega_m] | m \rangle = \hbar\omega_{nm} \rho_{nm}$$

где  $\omega_{nm} = \omega_n - \omega_m$

Дипольное взаимодействие  $H_{\text{int}}$  с электромагнитным полем фемтосекундного импульса:

$$H_{\text{int}}(t) = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}(t)$$

где  $\boldsymbol{\mu}$  – оператор дипольного взаимодействия.

Матричный элемент для состояний  $|n\rangle$  и  $|m\rangle$ :

$$\langle n | [H_{\text{int}} \rho - \rho H_{\text{int}}] | m \rangle = \sum_l (H_{\text{int}nl} \rho_{lm} - \rho_{nl} H_{\text{int}lm}) = -\mathbf{E}(t) \cdot \sum_l (\boldsymbol{\mu}_{nl} \rho_{lm} - \rho_{nl} \boldsymbol{\mu}_{lm}).$$

## Матрица плотности: Уравнение эволюции

Последний член  $H_{rel}$  в (1) описывает взаимодействие, приводящее к фазовой релаксации:

$$\frac{\partial \rho_{nm}}{\partial t} \Big|_{relax} = -\gamma_{nm} (\rho_{nm} - \rho_{nm}^{(0)}),$$

Это уравнение приводит к экспоненциальной релаксации со скоростью  $\gamma_{nm}$ . Это “dephasing rate“ при  $n \neq m$  и “population relaxation rate“ при  $n = m$ .

$\rho^{(0)}$  оператор плотности при термическом равновесии. При низкой (нулевой) температуре заполнено только основное состояние, поэтому

$$\rho_{00}^{(0)} = 1$$

А все остальные состояния пустые (их матричные элементы раны нулю).

Уравнение эволюции для матричных элементов можно расписать в виде:

$$\left( i \frac{d}{dt} - \omega_{nm} + i\gamma_{nm} \right) \rho_{nm}(t) = -\frac{E(t)}{\hbar} \sum_l [\mu_{nl} \rho_{lm}(t) - \rho_{nl}(t) \mu_{lm}] \quad (3)$$

## Матрица плотности: Функция Грина

Решения уравнения (3) для  $\delta$ -образного импульса  $E(t) = \delta(t)$  в правой части, [ $\delta(t)$  – функция Дирака]:

$$\left( i \frac{d}{dt} - \omega_{nm} + i\gamma_{nm} \right) G_{nm}(t) = -\frac{\delta(t)}{\hbar},$$

является (временной)функцией Грина  $G_{nm}(t)$ :

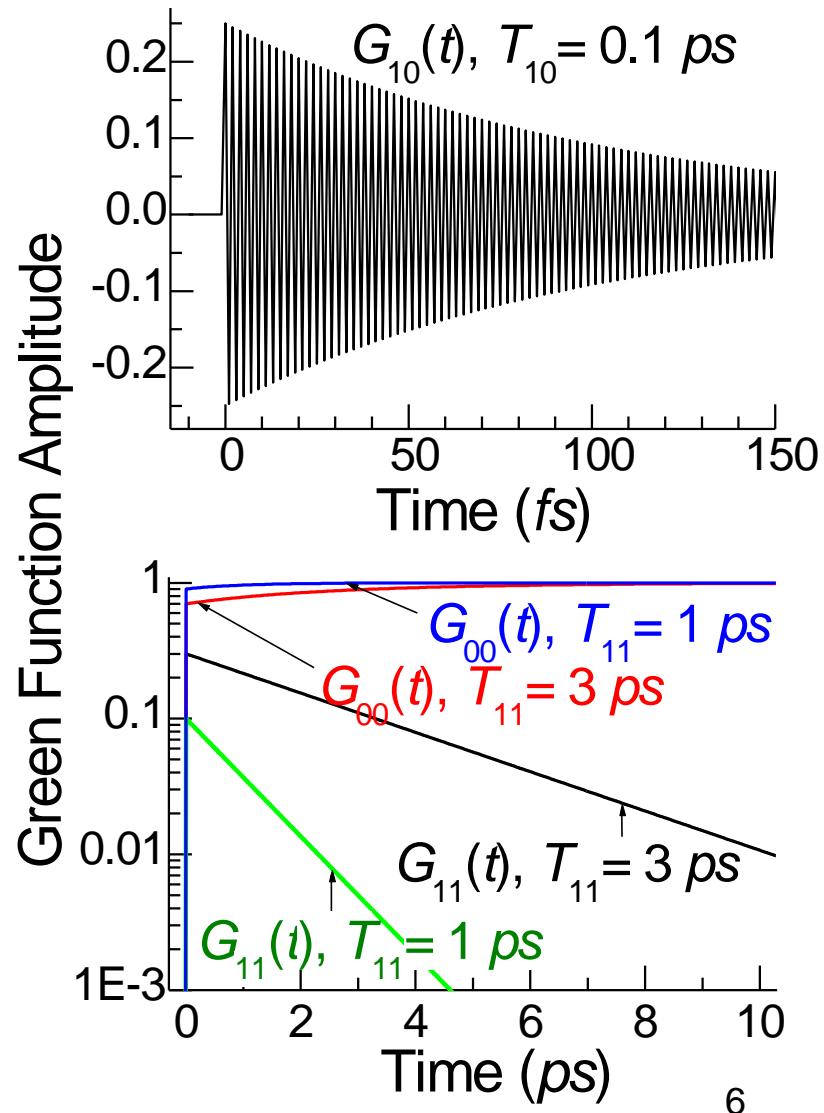
$$G_{nm}(t) = \frac{i}{\hbar} \theta(t) \exp(-i\omega_{nm}t - \gamma_{nm}t), \quad (2)$$

где  $\theta(t)$  –(ступенчатая) функция Хевисайда.

Фурье-преобразование функции Грина  $G_{nm}(t)$ :

$$G_{nm}(\omega) = -\frac{1}{\hbar(\omega - \omega_{nm} + i\gamma_{nm})}.$$

Функция Грина интерпретируется как отклик многоуровневой системы на сверхкороткое импульсное возбуждение



## Матрица плотности: Произвольное возбуждение $E(t)$

Решение уравнения (1) при произвольной амплитуде импульса  $E(t)$  описывается сверткой:

$$\rho_{nm}(t) = G_{nm}(t) \otimes \left\{ E(t) \sum_l [\mu_{nl} \rho_{lm}(t) - \rho_{nl}(t) \mu_{lm}] \right\}. \quad (3)$$

Оператор плотности – просто свертка  $\otimes$  функции Грина и правой части (источник) уравнения

$$E(t) \sum_l [\mu_{nl} \rho_{lm}(t) - \rho_{nl}(t) \mu_{lm}],$$

которая в свою очередь есть произведение поля импульса  $E(t)$  на член [] зависящий от других элементов матрицы плотности.

Фурье-преобразование свертки of (3) есть произведение Фурье-преобразований:

$$\rho_{nm}(\omega) = -G_{nm}(\omega) FT \left\{ E(t) \sum_l [\mu_{nl} \rho_{lm}(t) - \rho_{nl}(t) \mu_{lm}] \right\}.$$

## Решение Уравнения: Теория возмущений

В общем случае уравнение (3) не имеет аналитического решения. Разложить элементы матрицы плотности в ряд Тейлора по амплитуде возбуждающего поля  $E(t)$ :

$$\rho(t) = \rho^{(0)}(t) + \rho^{(1)}(t) + \rho^{(2)}(t) + \rho^{(3)}(t) + \dots,$$

где  $\rho^{(j)}$  пропорциональна  $j+1$  степени электрического поля. Используя (3), находим

$$\rho_{nm}^{(j+1)}(t) = G_{nm}(t) \otimes \left( E(t) \sum_l [\mu_{nl} \rho_{lm}^{(j)} - \rho_{nl}^{(j)} \mu_{lm}] \right). \quad (4)$$

$\rho^{(j+1)}$  порядка  $j+1$  определяется элементами  $\rho^{(j)}$  порядка  $j$ .

(4) даёт последовательность уравнений, позволяющих посчитать итерационно матричные элементы вплоть до любого порядка разложения по электрическому полю.

Начальные условия (обычно)  $\rho_{00}^{(0)}(0) \approx 1$ , остальные  $\rho_{ij}^{(0)}(0) \approx 0$ , поэтому для первого порядка

$$\rho_{n0}^{(1)}(t) = G_{n0}(t) \otimes [E(t) \mu_{n0} \rho_{00}^{(0)}] = \mu_{n0} G_{n0}(t) \otimes E(t),$$

$$\rho_{0n}^{(1)}(t) = G_{0n}(t) \otimes [-E(t) \rho_{00}^{(0)} \mu_{0n}] = -\mu_{0n} G_{0n}(t) \otimes E(t) = [\rho_{n0}^{(1)}(t)]^*.$$

## Решение Уравнения: Теория возмущений

Во втором порядке,

$$\rho_{nm}^{(2)}(t) = G_{nm}(t) \otimes E(t) [\mu_{n0} \rho_{0m}^{(1)} - \rho_{n0}^{(1)} \mu_{0m}] = \quad (5)$$

$$\mu_{n0} \mu_{0m} G_{nm}(t) \otimes E(t) [ -G_{0m}(t) - G_{n0}(t) \otimes E(t) ] .$$

$$E(t) = \operatorname{Re}\{\tilde{E}(t)\} = [\tilde{E}(t)e^{-i\omega_L t} + \tilde{E}^*(t)e^{i\omega_L t}] / 2$$

поэтому (5) является суммой 8-ми членов.

Rotating-wave approximation означает что мы концентрируемся только на резонансных членах. Эти два из восьми имеют вид:

$$\rho_{nm}^{(2)}(t) = -\frac{\mu_{n0} \mu_{0m}}{4} G_{nm}(t) \otimes \tilde{E}(t) [ G_{0m}(t) \otimes \tilde{E}^*(t) ] + \tilde{E}^*(t) [ G_{n0}(t) \otimes \tilde{E}(t) ] \quad (5a)$$

Можно показать что все члены нечетной степени  $\rho_{i=j}^{(odd)}$  и четной степени  $\rho_{i \neq j}^{(even)}$  равны нулю.

**Вывод: Метод теории возмущений позволяет найти элементы матрицы плотности в виде последовательности произведений и сверток.**

# ТЕОРИЯ ВОЗМУЩЕНИЙ: Только два уровня

Двухуровневая система с основным  $|g\rangle$  и возбужденным  $|e\rangle$  уровнями. Если имеется центр инверсии, то  $\mu_{ee} = \mu_{gg} \equiv 0$ ;  $\mu_{eg} = \mu_{ge}^* \neq 0$ . Используя (3) получим

$$\rho_{eg}(t) = \mu_{eg} G_{eg}(t) \otimes E(t)[\rho_{gg}(t) - \rho_{ee}(t)] , \quad (6)$$

определяющее когерентность через заселённости,

$$\rho_{ee}(t) = G_{ee}(t) \otimes E(t)[\mu_{eg} \rho_{ge} - \rho_{eg} \mu_{ge}]$$

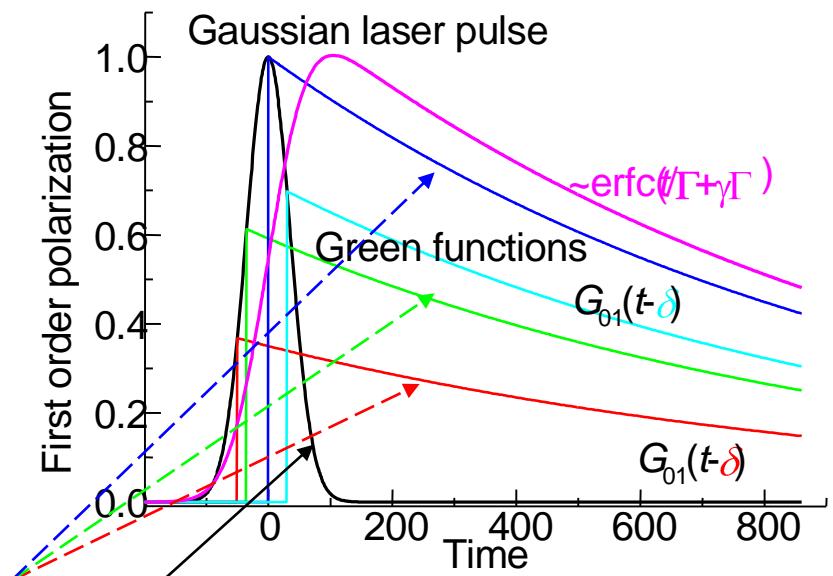
связывающее населенность с когерентностью.

Последовательное применение возмущения приводит к серии приближений:

$$\rho_{gg}^{(0)} \rightarrow \rho_{eg}^{(1)} \rightarrow \rho_{ee}^{(2)} \rightarrow \rho_{eg}^{(3)} \rightarrow \dots$$

Система в равновесии при нулевой температуре ( $\rho_{gg}^{(0)} = 1$ ); член первого порядка (когерентность):

$$\rho_{eg}^{(1)}(t) = \mu_{eg} G_{eg}(t) \otimes E(t)$$



## ТЕОРИЯ ВОЗМУЩЕНИЙ: Только два уровня

Член второго порядка (населённость):

$$\rho_{ee}^{(2)}(t) = -|\mu_{eg}|^2 G_{ee}(t) \otimes \begin{bmatrix} E(t) & [G_{eg}(t) + G_{ge}(t)] \otimes E(t) \end{bmatrix}. \quad (8)$$

$\text{Tr}\rho = 1$ , поэтому  $\text{Tr}\rho^{(2)} = 0$ . Отсюда

$$\rho_{gg}^{(2)} - \rho_{ee}^{(2)} = -2\rho_{ee}^{(2)}.$$

$$\rho_{eg}^{(3)}(t) = 2\mu_{eg}\mu_{ge}\mu_{eg} G_{eg}(t) \otimes E(t) \left[ G_{ee}(t) \otimes E(t) \{ [G_{eg}(t) + G_{ge}(t)] \otimes E(t) \} \right]. \quad (9)$$

В двухуровневой системе возникают только два времени релаксации:

$$\gamma_{eg} = 1/T_2,$$

где  $T_2$  - **dephasing time**, и

$$\gamma_{ee} = 1/T_1,$$

где  $T_1$  - **population relaxation time**.

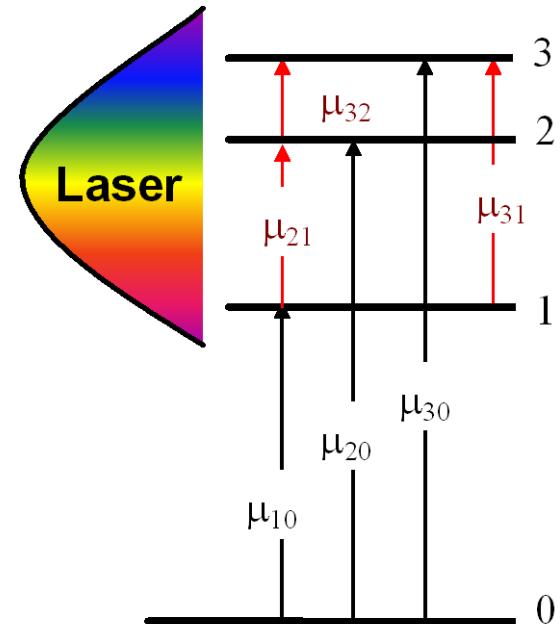
# Многоуровневая система: Индуцированная поляризация

Среднее по ансамблю индивидуальных возбужденных дипольных моментов создаёт макроскопическую поляризацию в фото-возбужденном полупроводнике.

Индуцированная макроскопическая поляризация определяет линейный и нелинейный отклик возбужденных состояний.

Материал – ансамбль из  $N$  (в единице объема) одинаковых, независимых многоуровневых систем.  
Поляризация в единице объема:

$$P(t) = N \langle \mu \rangle = N \text{Tr} \mu \rho(t) = N \sum_{n \neq m} \mu_{mn} \rho_{nm}. \quad (10)$$



Разложение поляризации по степеням поля

$$P(t) = P^{(1)}(t) + P^{(2)}(t) + P^{(3)}(t) + \dots$$

# Наведенная поляризация: Первый порядок

Матрица плотности в первом порядке

$$\rho_{nm}^{(1)}(t) = G_{nm}(t) \otimes \begin{bmatrix} E(t) & \mu_{nm}\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}\mu_{nm} \end{bmatrix}.$$

Преобразование Фурье

$$\rho_{nm}^{(1)}(\omega) = \mu_{nm}G_{nm}(\omega)E(\omega) \quad \rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}.$$

Вынужденная поляризация в первом порядке

$$P^{(1)}(\omega) \equiv \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega)E(\omega) =$$

$$N \sum_{n \neq m} \mu_{mn} \mu_{nm} G_{nm}(\omega) \quad \rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)} \quad E(\omega).$$

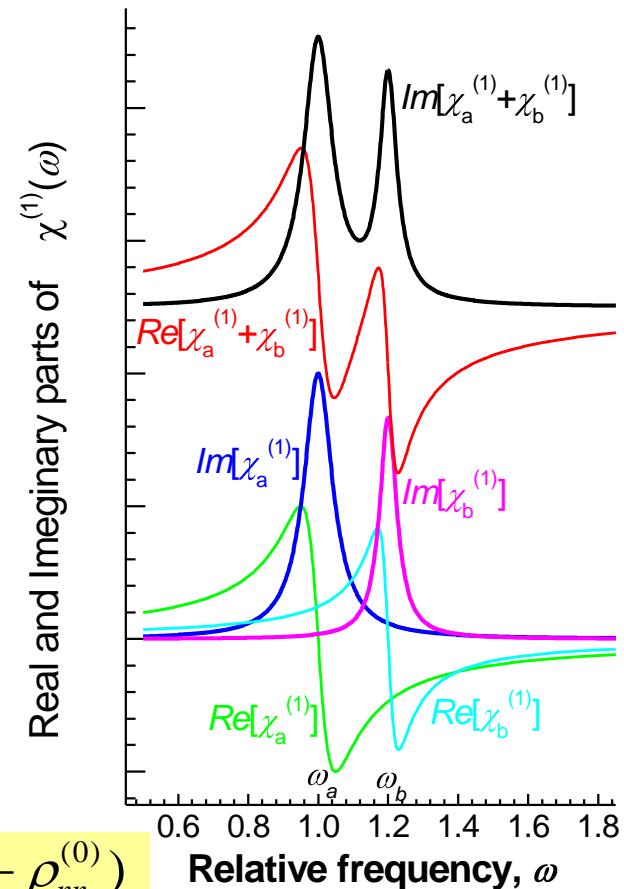
Линейная поляризация:

$$\chi^{(1)}(\omega) = N \sum_{n \neq m} \frac{-|\mu_{nm}|^2}{\hbar \epsilon_0} \frac{\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}}{\omega - \omega_{nm} + i\gamma_{nm}}.$$

Мнимая часть определяет

$$\alpha(\omega) = \frac{n\omega}{c} \operatorname{Im} \chi^{(1)}(\omega) = N \sum_{n \neq m} \frac{|\mu_{nm}|^2}{\hbar \epsilon_0} \frac{\gamma_{nm}(\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)})}{(\omega - \omega_{nm})^2 + \gamma_{nm}^2}.$$

**Спектр поглощения – сумма функций Лоренца с резонансными частотами  $\omega_{nm}$  и полуширинами  $\gamma_{nm}$ .**



## Населённость: Второй порядок, два уровня

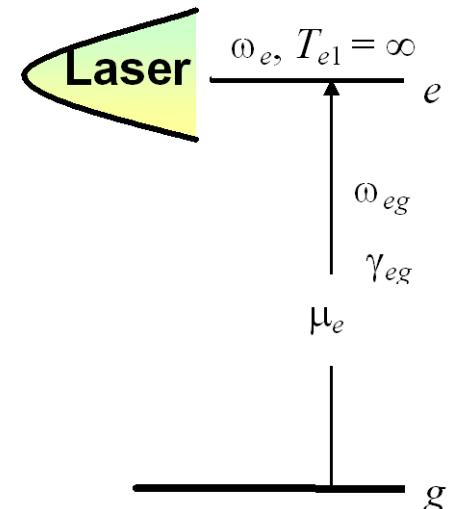
Двухуровневая система с бесконечным временем жизни  $T_{e1}$ :

$$G_{ee}(t) = i\theta(t)/\hbar$$

$$\rho_{ee}^{(2)}(t) = \frac{|\mu_{eg}|^2}{2\hbar} \operatorname{Im} \int_{-\infty}^t \tilde{E}^*(t') [G_{eg}(t') \otimes \tilde{E}(t')] dt'. \quad (12)$$

Поглощенная энергия в единицу времени не равна интегралу от **мощности** возбуждающего импульса из-за запаздывания отклика среды.

После окончания короткого импульса возбуждения, населённость возбужденного состояния:



$$\rho_{ee}^{(2)}(+\infty) = \frac{|\mu_{eg}|^2}{2\hbar} \operatorname{Im} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}^*(t') [G_{eg}(t') \otimes \tilde{E}(t')] dt' =$$

$$= \frac{|\mu_{eg}|^2}{2\hbar} \operatorname{Im} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}^*(\omega) G_{eg}(\omega) \tilde{E}(\omega) \frac{d\omega}{2\pi} = \frac{|\mu_{eg}|^2}{2\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} |\tilde{E}(\omega)|^2 \operatorname{Im} G_{eg}(\omega) \frac{d\omega}{2\pi}$$

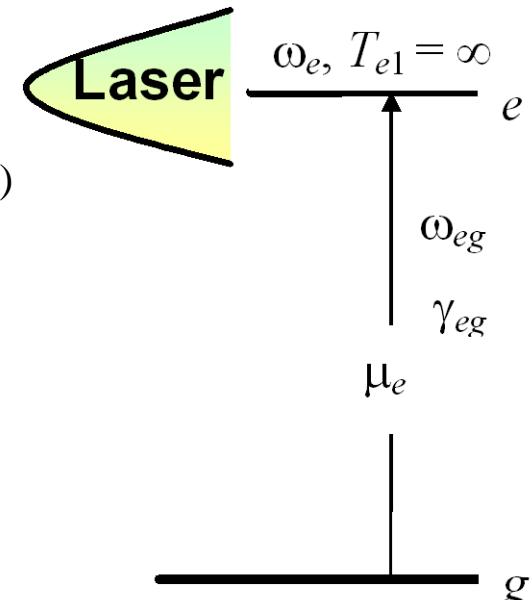
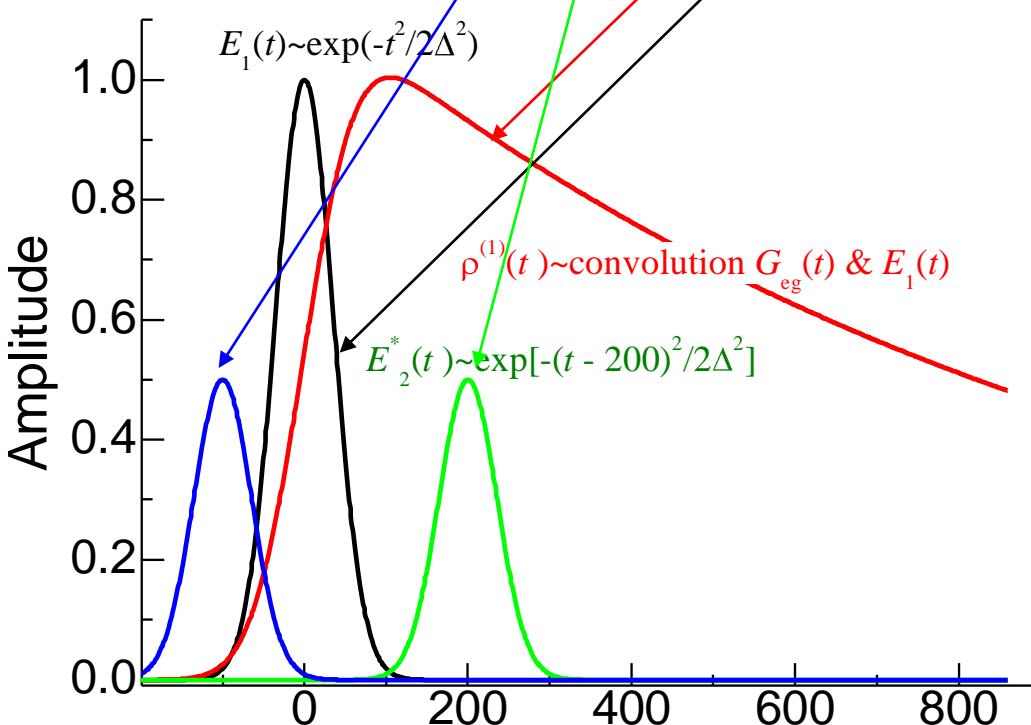
# Населённость: Второй порядок, два уровня

Двухуровневая система с бесконечным временем жизни  $T_{e1}$ :

$$G_{ee}(t) = i\theta(t)/\hbar$$

$$\rho_{ee}^{(2)}(t) = \frac{|\mu_{eg}|^2}{2\hbar} \operatorname{Im} \int_{-\infty}^t \tilde{E}^*(t') [G_{eg}(t') \otimes \tilde{E}(t')] dt'. \quad (12)$$

После окончания короткого импульса возбуждения, населённость возбужденного состояния:



Сохранение энергии: населенность возбуждаемая коротким лазерным импульсом пропорциональна поглощенной энергии, с учетом перекрытия спектров поглощения и лазерного излучения.

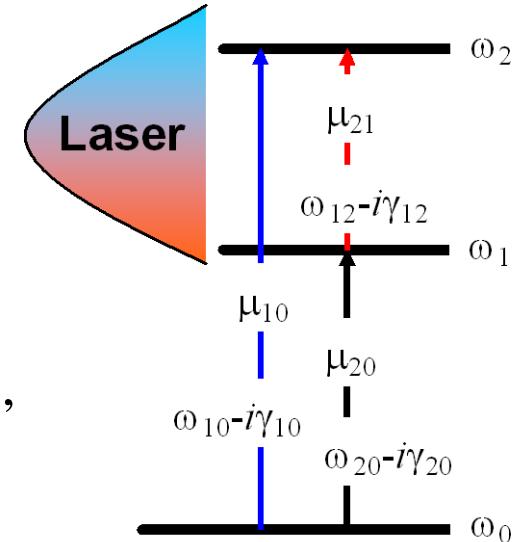
## Второй порядок: Многоуровневая система

Несколько (три) уровней возбуждены одновременно широкополосным импульсом: основное состояние  $|0\rangle$ , и два возбужденных состояния  $|1\rangle$  и  $|2\rangle$ .

Когерентным лазерным импульсом создаются населенности  $\rho_{11}$  и  $\rho_{22}$ , и когерентность между возбужденными состояниями  $\rho_{12}$ :

$$\rho_{21}^{(2)}(t) = -\mu_{20}\mu_{01}G_{21}(t) \otimes E(t) [G_{01}(t) + G_{20}(t)] \otimes E(t),$$

Из которого можно вычислить наведенную поляризацию  $P(t)$ :



$$P(t) = -\mu_{01}\mu_{12}\mu_{20}G_{21}(t) \otimes E(t) [G_{01}(t) + G_{20}(t)] \otimes E(t).$$

Эта поляризация осциллирует с  $\omega_{12}$ , и затухает с «dephasing rate»  $\gamma_{12}$ , исчезая с центро-симметричных средах, в которых произведение  $\mu_{01}\mu_{12}\mu_{20}$  равно нулю из-за четности состояний.

Эта поляризация приводит к электромагнитному излучению на частоте  $\omega_{12}$ , экспериментально обнаруженному Roskos и многими другими.

## Третий порядок: Pump-Probe

Образец возбуждают два «неколлинеарных» импульса: Pump с волновым вектором  $\mathbf{k}_1$  и Probe (Test) с вектором  $\mathbf{k}_2$ . Детектор регистрирует излучение распространяющееся в направлении  $\mathbf{k}_3$ . Полное электрическое поле

$$E(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \left[ \tilde{E}_1(t) e^{-i(\omega_L t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})} + \tilde{E}_1^*(t) e^{+i(\omega_L t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})} + \tilde{E}_2(t) e^{-i(\omega_L t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})} + \tilde{E}_2^*(t) e^{+i(\omega_L t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})} \right]$$

Надо подставить в

$$\rho_{eg}^{(3)}(t) e^{i\mathbf{k}_4 \cdot \mathbf{r}} = 2\mu_{eg}\mu_{ge}\mu_{eg} G_{eg}(t) \otimes E(t) \left[ G_{ee}(t) \otimes E(t) [G_{eg}(t) + G_{ge}(t)] \otimes E(t) \right]$$

Электрическое поле трижды входит в выражение для  $\rho_{eg}^{(3)}(t)$ . Получаются члены типа

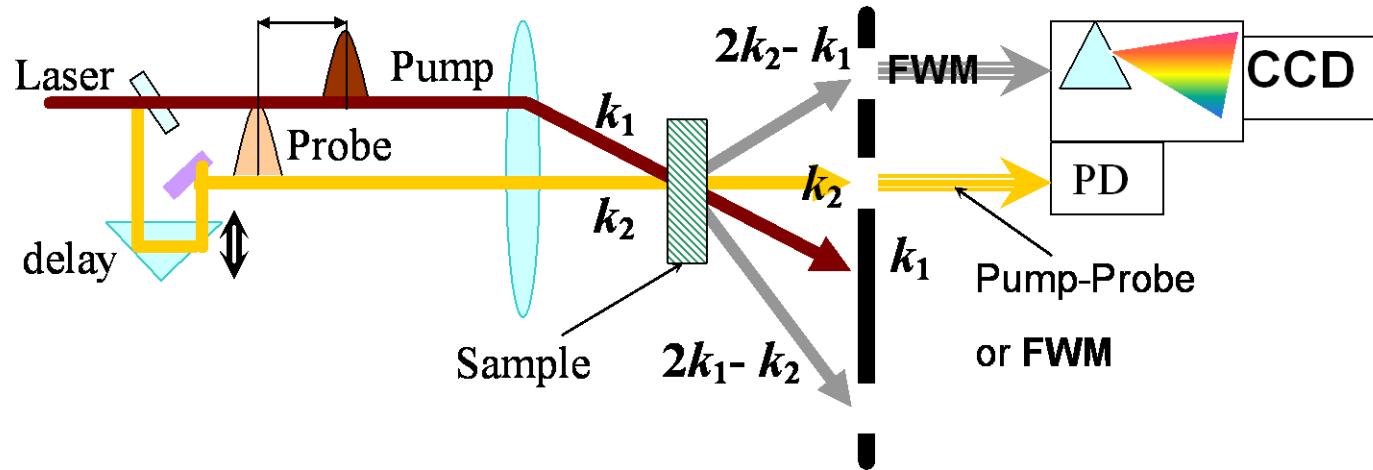
$$\propto e^{i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}} e^{i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}} e^{i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}}; \quad \propto e^{i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}}; \quad \propto e^{i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}}; \quad \propto e^{i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}} \dots$$

frequency tripling      saturation absorption      pump-probe      differential reflection

Три различных вклада в РР: в зависимости от задержки между импульсами и направления регистрации.

## Третий порядок: Два уровня, Эксперимент

Для регистрации отклика высшего порядка используется два или более луча (импульса).  
Дополнительный параметр- задержка между двумя импульсами.



$$\rho_{eg}^{(3)}(t) e^{ik_4 \cdot r} = 2\mu_{eg}\mu_{ge}\mu_{eg} G_{eg}(t) \otimes E(t) \left[ G_{ee}(t) \otimes E(t) \{ [G_{eg}(t) + G_{ge}(t)] \otimes E(t) \} \right]$$

Возбуждающее электрическое поле является суммой членов:

$$E(\mathbf{r}, t) = \left[ \tilde{E}_1(t) e^{-i(\omega_L t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})} + \tilde{E}_1^*(t) e^{+i(\omega_L t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})} + \tilde{E}_2^*(t) e^{-i(\omega_L t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})} \tilde{E}_2(t) e^{-i(\omega_L t - \mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r})} \right] / 2$$

с различными пространственными распределениями, поэтому наведенная поляризация может иметь различные вариации пространственного распределения.

Различные пространственные распределения связаны с соответствующими членами. Их можно выделить регистрируя сигналы распространяющиеся в соответствующих направлениях.

# Pump-Probe: Дифференциальное поглощение

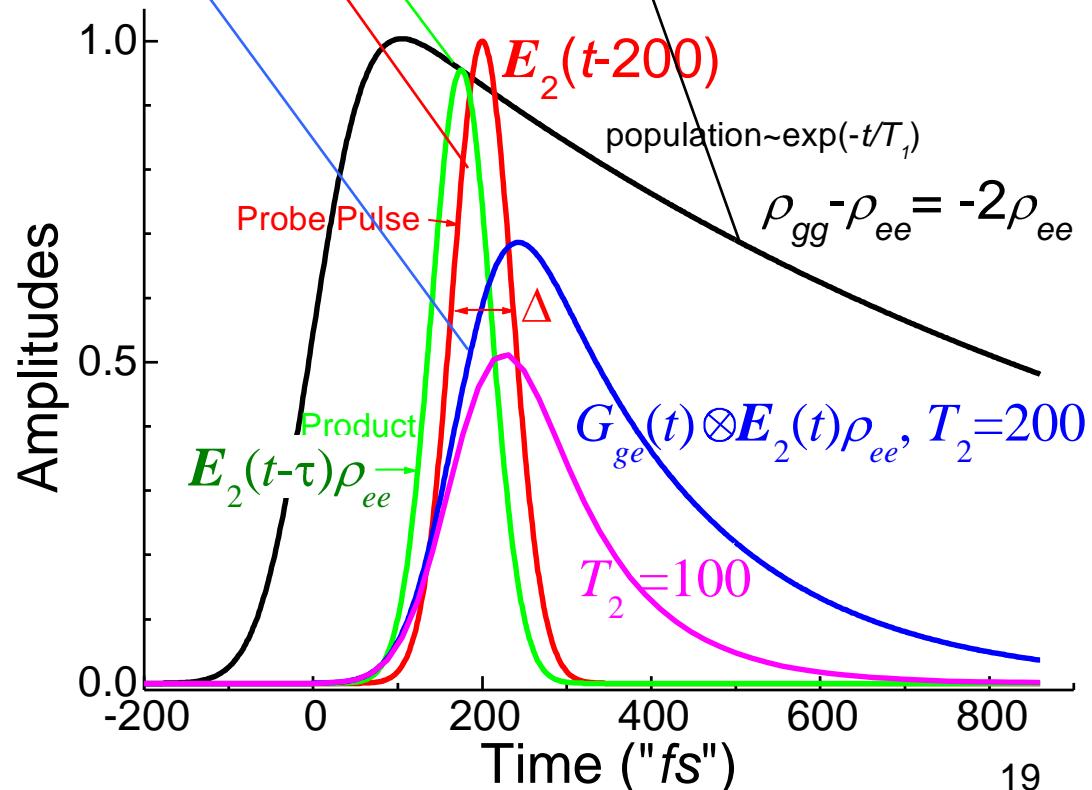
Первый вклад – “differential absorption”. Pump импульс создаёт населенность возбужденного уровня, из-за чего изменяется пропускание (и спектр) пробного импульса.

$$\rho_{eg}^{(3)}(t, \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_1) = \frac{\mu_{eg}}{2} G_{eg}(t) \otimes \tilde{E}_2(t, \mathbf{k}_2) [\rho_{gg}^{(2)}(t, \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_1) - \rho_{ee}^{(2)}(t, \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_1)]$$

$$\propto G_{eg}(t) \otimes \left[ \tilde{E}_2(t, \mathbf{k}_2) \ G_{ee}(t) \otimes \tilde{E}_1^*(t, -\mathbf{k}_1) [G_{eg}(t) \otimes \tilde{E}_1(t, \mathbf{k}_1)] - \tilde{E}_1(t, \mathbf{k}_1) [G_{eg}^*(t) \otimes \tilde{E}_1^*(t, -\mathbf{k}_1)] \right]$$

Сигнал возникает только при положительной задержке, т.е. когда Probe зондирует образец после Pump. Просветление в спектре пропускания пропорционально населенности возбужденного состояния и спадает экспоненциально со временем жизни  $T_1$ .

**Это традиционная интерпретация изменения pump-probe спектра, при которой когерентность лазерного излучения не играет роли.**



## Pump-Probe: «Perturbed Polarization»

Другой вклад – “perturbed polarization decay”-наблюдается в том же направлении  $k_2$ , но для отрицательных задержек, когда Probe предшествует Pump.

$$\rho_{eg}^{(3)PPT}(t) = -\frac{\left|\mu_{eg}\right|^2 \mu_{eg}}{4} G_{eg}(t) \otimes \begin{bmatrix} \tilde{E}_1(t, k_1) & G_{ee}(t) \otimes \tilde{E}_1^*(t, k_1) [G_{eg}(t) \otimes \tilde{E}_2(t, k_2)] \end{bmatrix}$$

Сигнал интерпретируется как возмущение поляризации создаваемой пробным импульсом следующим за ним Pump-импульсом.

Спектр такого сигнала является преобразованием Фурье временной зависимости. Поэтому «внезапное» изменение экспоненциально спадающего сигнала Pump-импульсом приводит к осцилляциям в спектре пропускания: их период обратно пропорционален задержке между Probe и Pump импульсами.

## Pump-Probe: “Coherent Artefact”

Третий вклад – “the pump-polarization coupling”, или “coherent artifact” возникает когда Probe импульс перекрывается во времени с Pump (задержка =0).

$$\begin{aligned} \rho_{eg}^{(3)PTP}(t, \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) &= \frac{\mu_{eg}}{2} G_{eg}(t) \otimes E_1(t, \mathbf{k}_1) [\rho_{gg}^{(2)}(t, \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) - \rho_{ee}^{(2)}(t, \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1)] = \\ &- \frac{|\mu_{eg}|^2 \mu_{eg}}{4} G_{eg}(t) \otimes \left[ \tilde{E}_1(t) \ G_{ee}(t) \otimes \tilde{E}_2(t) [G_{eg}^*(t) \otimes \tilde{E}_1^*(t)] \right] \end{aligned}$$

Этот сигнал интерпретируется как дифракция Pump- излучения в направлении Probe-луча из-за рассеяния на пространственной решетке, образовавшейся вследствие интерференции Pump и Probe лучей.

# Квантовые биения или Интерференция поляризаций

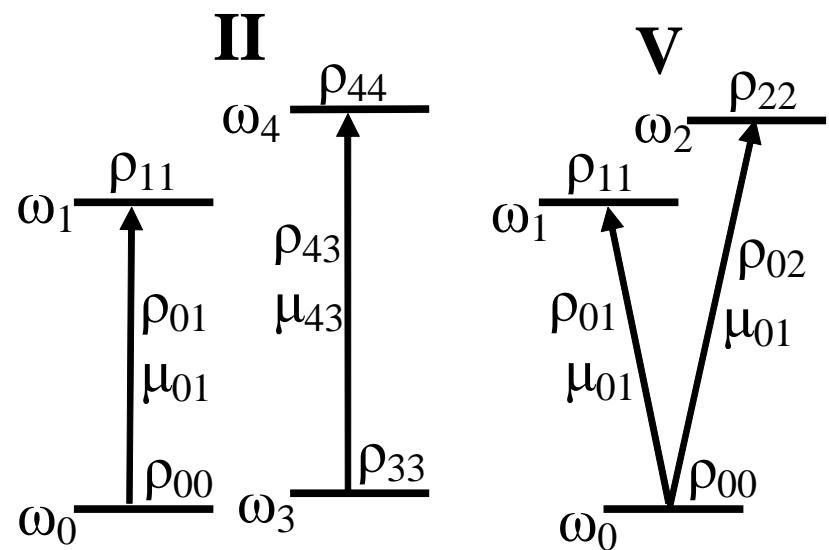
Атомная система характеризуется двумя близко-лежащими оптическими переходами.

Интерференция поляризаций – когерентная суперпозиция откликов от независимых переходов (невзаимодействующих двухуровневых систем)..

Квантовые биения в трехуровневой системе.  
Осциллирует волновая функция, что проявляется в детектируемом сигнале.

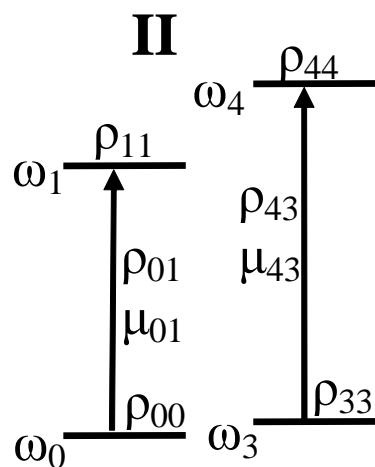
Четырехволновое смешение со спектральным разрешением может использоваться для отличия между этими двумя типами осцилляций.

This can be realized in the following model systems:



- II) Две независимые двухуровневые системы с близколежащими частотами переходов.
- V) Трехуровневая система с двумя близколежащими переходами между общим основным уровнем и двумя возбужденными состояниями.

# Quantum Beats vs. Polarization Interference



0-1, 3-4 и 0-2 – дипольно-разрешенные переходы с дипольными моментами  $\mu_{10}$ ,  $\mu_{43}$ , и  $\mu_{20}$ .

Их комплексные энергии

$$\Omega_{ij} = \omega_{ij} - i\gamma_{ij}$$

**Оптические Блоховские Уравнения** имеют вид  
(без релаксации в равновесное состояние  $\rho_{ii}=0$   
время жизни  $T_1 \rightarrow \infty$ ),

$$-i\hbar(\dot{\rho}_{10} + i\Omega_{10}\rho_{10}) = \mu_{10} \quad \rho_{11} - \rho_{00} \quad E$$

$$-i\hbar(\dot{\rho}_{10} + i\Omega_{10}\rho_{10}) = [\mu_{10} \quad \rho_{11} - \rho_{00} \quad -\mu_{02}\rho_{21}]E$$

$$-i\hbar(\dot{\rho}_{43} + i\Omega_{43}\rho_{43}) = \mu_{43} \quad \rho_{44} - \rho_{33} \quad E$$

$$-i\hbar(\dot{\rho}_{20} + i\Omega_{20}\rho_{20}) = [\mu_{20} \quad \rho_{22} - \rho_{00} \quad -\mu_{01}\rho_{21}]E$$

$$-i\hbar\dot{\rho}_{11} = \mu_{10}(\rho_{10} - \rho_{10}^*)E$$

$$-i\hbar(\dot{\rho}_{21} + i\Omega_{21}\rho_{21}) = (\mu_{20}\rho_{01} - \rho_{20}\mu_{01})E$$

$$-i\hbar\dot{\rho}_{44} = \mu_{43}(\rho_{43} - \rho_{43}^*)E$$

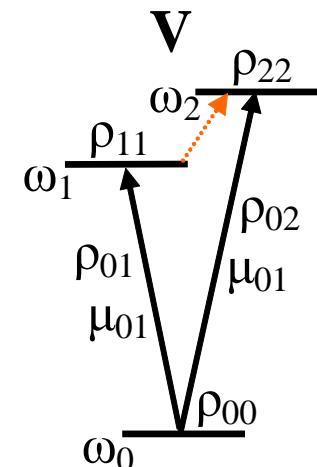
$$-i\hbar\dot{\rho}_{11} = \mu_{10}(\rho_{10} - \rho_{10}^*)E$$

$$\rho_{00} + \rho_{11} = 1$$

$$-i\hbar\dot{\rho}_{22} = \mu_{20}(\rho_{10} - \rho_{10}^*)E$$

$$\rho_{33} + \rho_{44} = 1$$

$$\rho_{00} + \rho_{11} + \rho_{22} = 1$$



## Quantum Beats : Решение

$$-i\hbar(\dot{\rho}_{10} + i\Omega_{10}\rho_{10}) = [\mu_{10} \quad \rho_{11} - \rho_{00} \quad -\mu_{02}\rho_{21}]E$$

$$-i\hbar(\dot{\rho}_{20} + i\Omega_{20}\rho_{20}) = [\mu_{20} \quad \rho_{22} - \rho_{00} \quad -\mu_{01}\rho_{21}]E$$

$$-i\hbar\dot{\rho}_{11} = \mu_{10}(\rho_{10} - \rho_{10}^*)E \quad \rho_{00} + \rho_{11} + \rho_{22} = 1$$

$$-i\hbar\dot{\rho}_{22} = \mu_{20}(\rho_{20} - \rho_{20}^*)E \quad -i\hbar(\dot{\rho}_{21} + i\Omega_{21}\rho_{21}) = (\mu_{20}\rho_{01} - \rho_{20}\mu_{01})E$$

Предположим, что в начальный момент уровень

$$\rho_{00}(t=0) = 1, \text{ и } \rho_{11}(t=0) = \rho_{02}(t=0) = 0.$$

Также предполагаем, что вначале когерентность в системе отсутствует:

$$\rho_{10}(t=0) = \rho_{20}(t=0) = \rho_{21}(t=0) = 0.$$

Амплитуды переходов первого порядка  $\rho_{10}^{(1)} \dots \rho_{20}^{(1)}$

Подставляя полученные значения и электрическое поле  $E(t)$  в следу-

$$\rho_{11}^{(2)}(t), \rho_{11}^{(2)}(t), \rho_{00}^{(2)}(t) \dots \rho_{21}^{(2)}(t)$$

Затем подставляем эти элементы и электрическое поле  $E(t)$  в верхние два уравнения,

$$\rho_{10}^{(3)} \dots \rho_{20}^{(3)}$$

# Quantum Beats : Решение

Окончательное выражение для поляризации 3-го порядка есть сумма произведений:

$$P^{(3)}(t) = \mu_{01} P_{01}^{(3)}(t) + \mu_{02} P_{02}^{(3)}(t)$$

В случае δ-образного лазерного импульса имеем:

$$E(t) = \delta(t) \exp[-i(\omega_L t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})] + \delta(t-\tau) \exp\{-i[\omega_L(t-\tau) - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}]\}$$

получаем

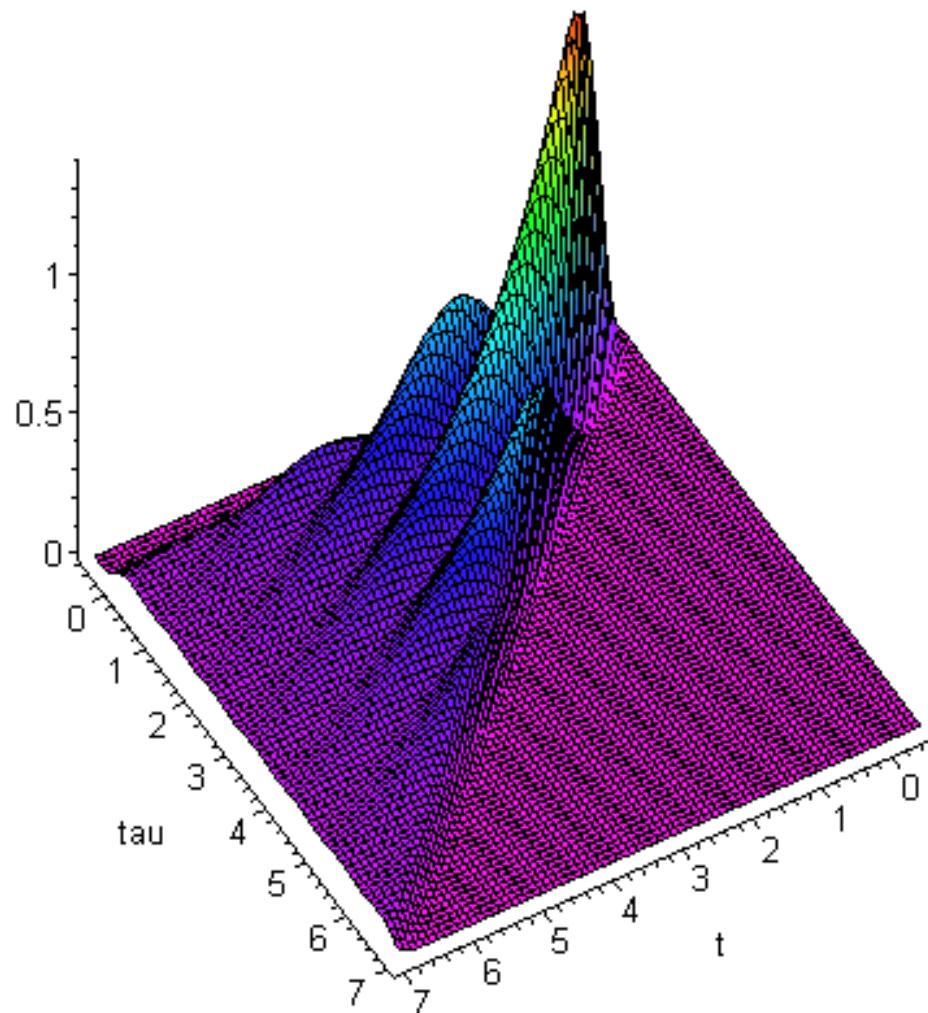
$$\boxed{P^{(3)}(t, \tau) \propto e^{i(2\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) \cdot \mathbf{r}} iN \Theta(\tau) \Theta(t - \tau) \times \\ e^{-i\Omega_{10}(t-\tau)} \mu_{10}^2 [2\mu_{10}^2 e^{i\Omega_{10}^* \tau} + \mu_{20}^2 e^{i\Omega_{20}^* \tau}] + e^{-i\Omega_{20}(t-\tau)} \mu_{20}^2 [2\mu_{20}^2 e^{i\Omega_{20}^* \tau} + \mu_{10}^2 e^{i\Omega_{10}^* \tau}]}$$

$\Theta(t)$ - ступенчатая функция Хевисайда. Следовательно, эволюция поляризации в реальном времени  $t$  - два экспоненциальных спада с параметрами  $\gamma$ . Её спектр:

$$P^{(3)}(\omega, \tau > 0) \propto \frac{\mu_{10}^2 [2\mu_{10}^2 e^{i\Omega_{10}^* \tau} + \mu_{20}^2 e^{i\Omega_{20}^* \tau}]}{\Omega_{10} - \omega} + \frac{\mu_{20}^2 [2\mu_{20}^2 e^{i\Omega_{20}^* \tau} + \mu_{10}^2 e^{i\Omega_{10}^* \tau}]}{\Omega_{20} - \omega}$$

# Quantum Beats: Решение для $\delta(t)$

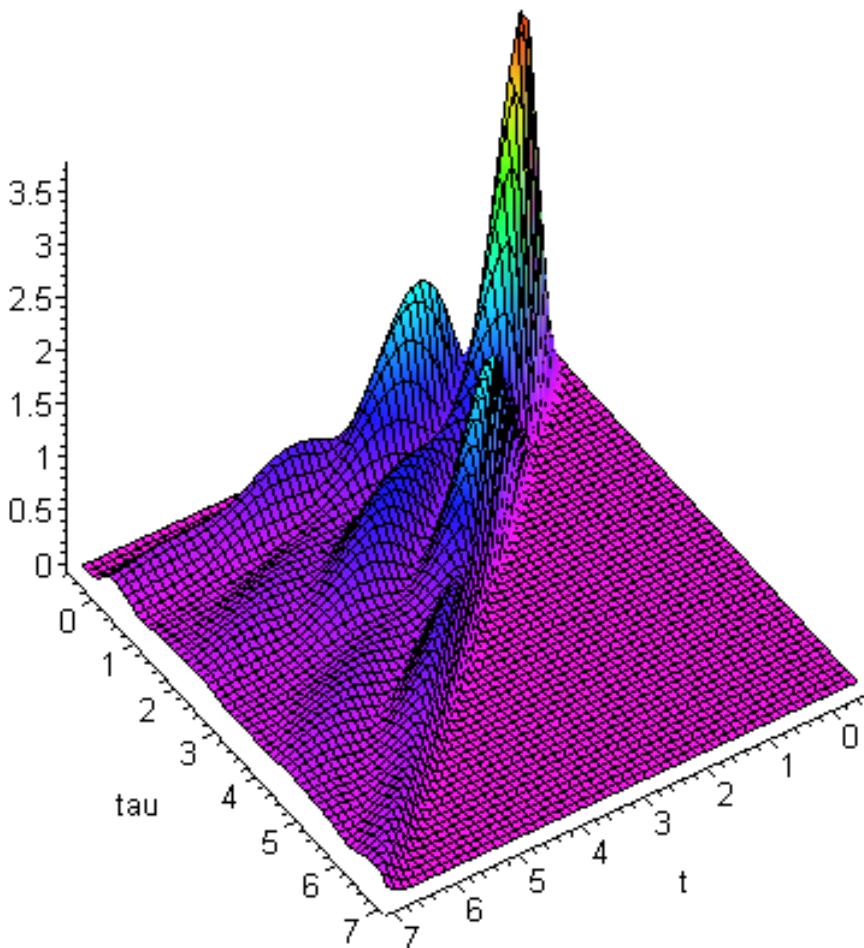
Зависимость сигнала  $\sim |P^{(3)}(t, \tau)|^2$  четырех-волнового смешивания от реального времени  $t$  и положительной задержки  $\tau$  между Pump и Probe  $\delta$ -импульсами:



# Polarization Interference: Решение

Наведенную поляризацию для II системы можно вычислить используя 6 левых уравнения и использованную выше итерацию. Поляризация третьего порядка:

$$P_{PI}^{(3)}(t, \tau) \propto i\Theta(\tau)\Theta(t-\tau)[N_{10}\mu_{10}^4 e^{-i\Omega_{10}(t-\tau)}e^{i\Omega_{10}^*\tau} + N_{43}\mu_{43}^4 e^{-i\Omega_{43}(t-\tau)}e^{i\Omega_{43}^*\tau}] = \\ \equiv i\theta(\tau)\theta(t-\tau)\left[N_{10}\mu_{10}^4 e^{-i\omega_{10}(t-2\tau)}e^{-\gamma_{10}t} + N_{43}\mu_{43}^4 e^{-i\omega_{20}(t-2\tau)}e^{-\gamma_{12}t}\right].$$



Сигнал четырех-волнового смешивания для несвязанных Систем (Интерференция Поляризаций) представлена на левом рисунке.

Дополнительные осцилляции возникают из-за перекрёстных членов, которые изменяют фазу при  $(t-2\tau)$ .

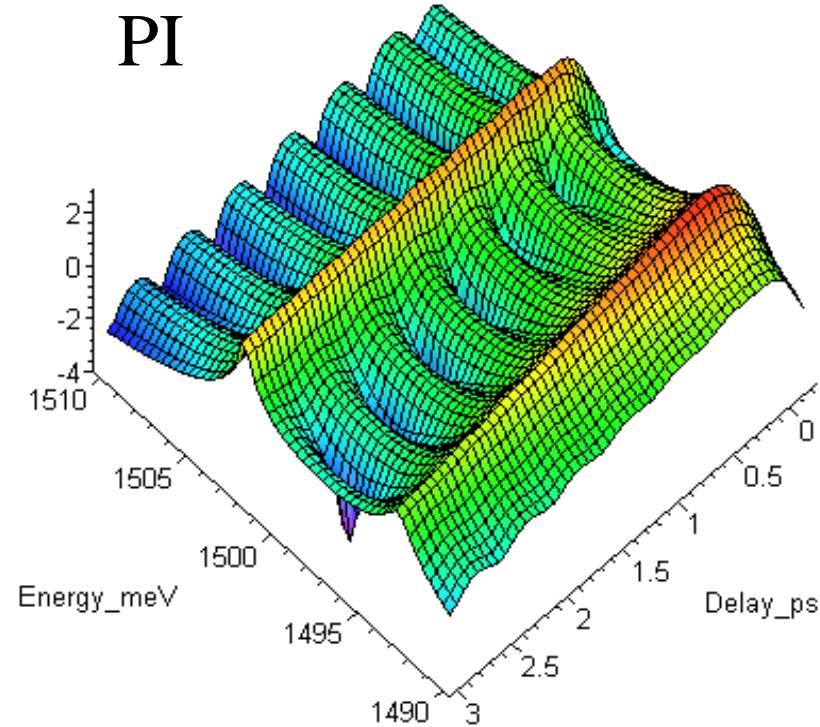
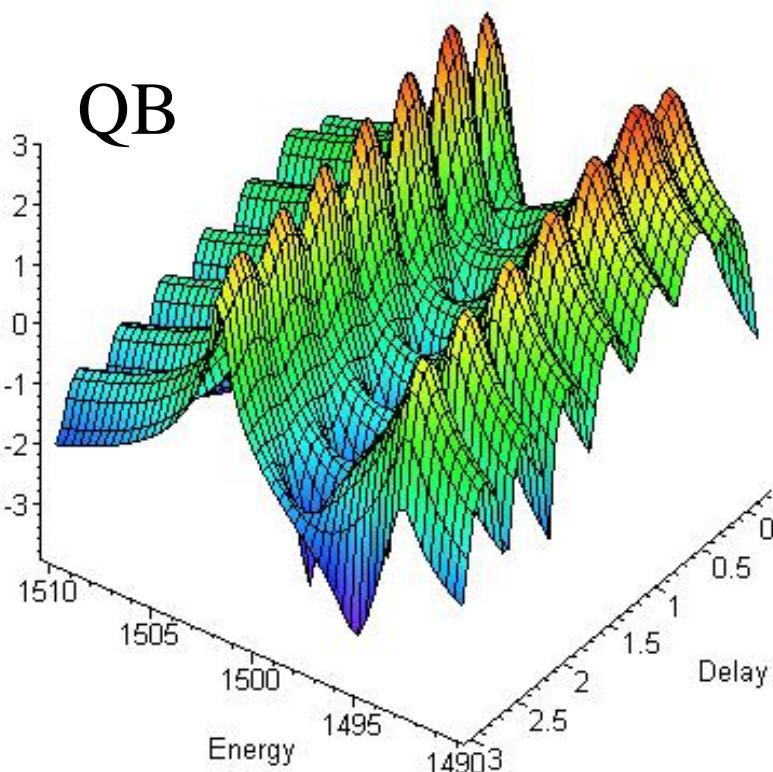
# Quantum Beats vs. Polarization Interference

Преобразования Фурье полученных выше поляризаций  $P^{(3)}(t, \tau)$  дают спектры сигнала ЧВС @  $\tau > 0$ :

$$P_{QB}^{(3)}(\omega, \tau > 0) \propto \frac{\mu_{10}^2 [2\mu_{10}^2 e^{i\Omega_{10}^* \tau} + \mu_{20}^2 e^{i\Omega_{20}^* \tau}]}{\Omega_{10} - \omega} + \frac{\mu_{20}^2 [2\mu_{20}^2 e^{i\Omega_{20}^* \tau} + \mu_{10}^2 e^{i\Omega_{10}^* \tau}]}{\Omega_{20} - \omega}$$

Положив в правой части  $\mu_{02}=0$ , получим вклад от одной двухуровневой системы. Две независимые двухуровневые системы будут иметь поляризацию третьего порядка:

$$P_{PI}^{(3)}(\omega, \tau) \propto \frac{2\mu_{01}^4 e^{i\Omega_{10}^* \tau}}{\Omega_{10} - \omega} + \frac{2\mu_{43}^4 e^{i\Omega_{43}^* \tau}}{\Omega_{43} - \omega}$$



# Quantum Beats $\leftrightarrow$ Polarization Interference: ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В случае сравнимых дипольных матричных элементов  $\mu_{10} \approx \mu_{20}$  и сильно отличающихся констант затухания переходов  $\gamma_{10} \gg \gamma_{20}$  получим простое выражение для сигнала ЧВС вблизи одного из переходов:

$$I_{QB}^{FWM}(\omega, \tau) \propto \frac{e^{-2\gamma_{20}\tau} \{1 + e^{-\gamma_{10}\tau} \cos (\omega_{10} - \omega_{20})\tau\}}{(\omega_{10} - \omega)^2 + \gamma_{10}^2}$$

показывающим, что средний сигнал и амплитуда его модуляции спадают с наименьшей и наибольшей скоростями.

В простейшем случае интенсивность сигнала

$$\mathbf{I}^{(3)} = \mathbf{I}_{ave}[1 + I_m \cos(\Delta\omega \cdot \tau + \phi)]$$

где  $\Delta\omega$ - разница между двумя переходами. При этом  $\mathbf{I}_{ave}$ ,  $I_m$  и  $\phi$  могут быть аналитическими функциями  $\omega$  и/или  $\tau$ :

В случае **Квантовых Биений**, в сигнале спектрально-разрешенного ЧВС при переходе через резонанс изменение фазы  $\phi$  амплитуды модуляции  $I_m$  незначительны. The reason for this is that the beating between the two terms with different frequency denominator is unimportant. Between or outside the resonances  $\phi$  changes from  $-\pi/2$  to  $+\pi/2$ .

В случае **Интерференции Поляризации** при переходе через резонанс фаза изменяется от  $-\pi/2$  до  $+\pi/2$ , а амплитуда модуляции  $I_m$  проходит через минимум.