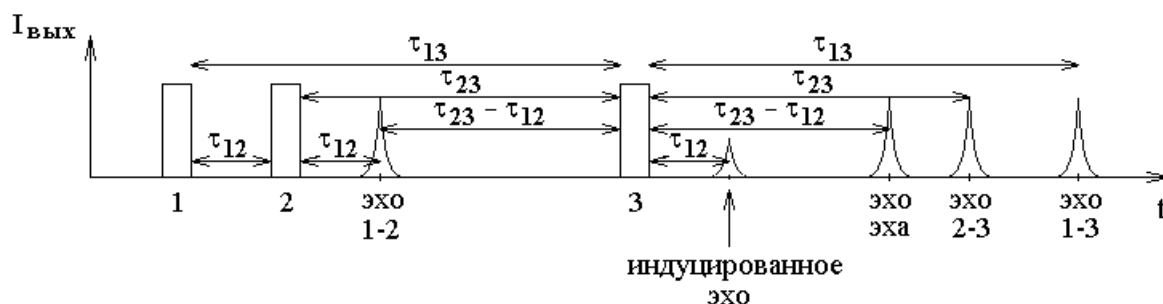


### Трехимпульсное фотонное эхо.

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 эхо-изображение.

Рассмотрим таблицу оптимальных площадей световых импульсов для регистрации каждого эха.

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

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:

$$S \sim e^{-2\Gamma\tau_{12}} \cdot (e^{-\gamma_1\tau_{23}} + e^{-\gamma_2\tau_{23}}).$$

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  $\Gamma$ . 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  $\Gamma$ ,  $\gamma_1$ ,  $\gamma_2$ , что представляет интерес для исследования молекулярных столкновений.

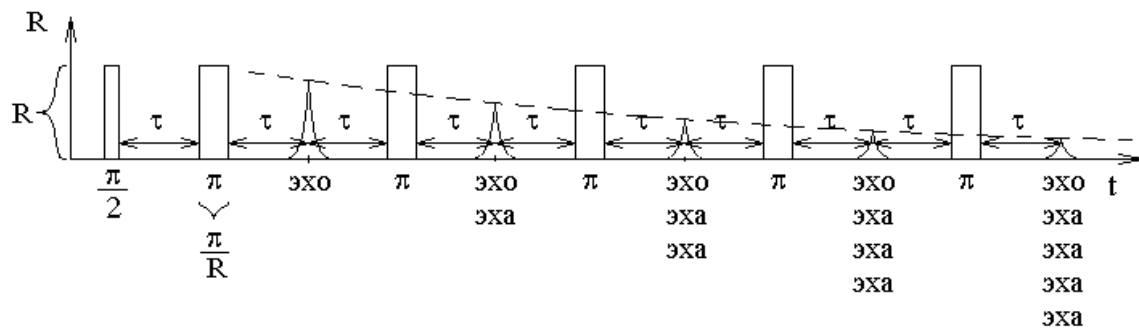
### Цуг эха Карра-Парселла.

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 эхом 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 амплитуды 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  $\frac{\pi}{R}$ .

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  $\Gamma$ . 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  $\Gamma$ , величина которой несет информацию о столкновениях молекул.

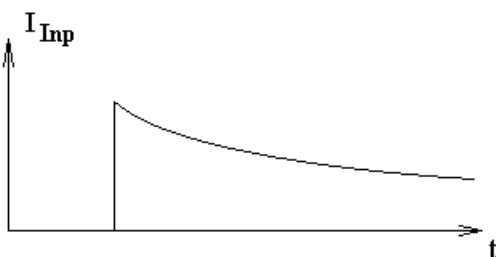
### Три основных метода быстрого включения и выключения светового поля.

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:

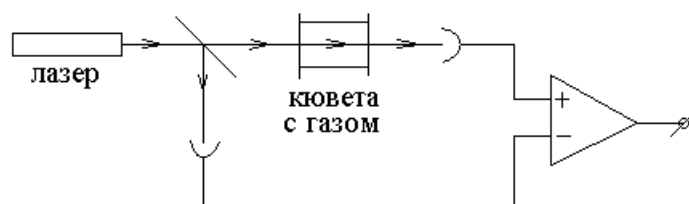


2. Плохо воспроизводится амплитуда излучения.

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 удастся 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:

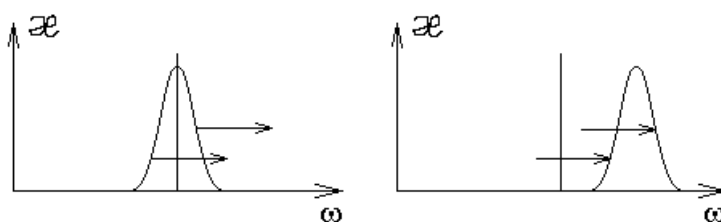


## 2-ой метод. Штарковское переключение частоты.



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.

### 3-й метод. Переключение частоты генерации.

Внутри резонатора лазера помещается электрооптический кристалл, например, KDP — дигидрофосфат калия:  $\text{H}_2\text{KPO}_4$ .

В кристалле KDP показатели преломления двух лучей зависят от приложенного электрического напряжения (эффект Поккельса), что позволяет быстро управлять оптической длиной кристалла и, как следствие, оптической длиной резонатора лазера, а через нее и частотой генерации лазера.

Оказывается, сдвинуть частоту генерации лазера можно гораздо быстрее, чем изменить амплитуду генерации. Минимальное время изменения частоты  $10^{-12}$  с — это постоянная времени эффекта Поккельса.

Вместо изменения частоты генерации лазера путем изменения оптической длины резонатора при изменении электрического напряжения на кристалле KDP рассмотрим эквивалентный, но более простой для анализа, метод изменения частоты — механическое перемещение зеркала вдоль оси резонатора лазера.

Пусть зеркало резонатора лазера движется (для определенности) навстречу лучу в течение времени  $\frac{2L}{c}$ . Такой промежуток времени интересен тем, что за это время весь свет, находящийся в резонаторе лазера, один раз отразится от движущегося зеркала.

При отражении от набегающего зеркала частота света увеличивается за счет продольного эффекта Доплера:

$$\frac{\Delta\nu}{\nu} = 2\frac{V}{c}.$$

Причина изменения частоты света состоит в следующем. В системе отсчета зеркала частота падающего на зеркало света и отраженного света одна и та же, а при переходе в лабораторную систему отсчета частоты этих двух волн испытывают доплеровский сдвиг частоты  $\frac{\Delta\nu}{\nu} = \frac{V}{c}$  в противоположные стороны.

Покажем, что частота отраженного зеркалом света в точности окажется соответствующей новой длине резонатора лазера в конце промежутка времени  $\frac{2L}{c}$ . Для этого найдем изменение частоты резонатора.

На удвоенной длине резонатора укладывается целое число длин волн  $2L = m\lambda$ . Только при выполнении этого условия, можно нарисовать зависимость напряженности световой волны от координаты резонатора лазера в один момент времени во всех точках резонатора. Если условие не выполнено, то функция получается неоднозначной.

Тогда при изменении длины резонатора отношение  $\frac{L}{\lambda} = const$  остается неизменным. С учетом  $\lambda \nu = c$  получаем, что  $L\nu = const$ . Продифференцируем это равенство и разделим результат на произведение  $L\nu$ . Тогда получим:

$$\frac{\Delta L}{L} = -\frac{\Delta \nu}{\nu}.$$

Подставим в это выражение в качестве  $\Delta L$  изменение длины резонатора за все время движения зеркала  $\frac{2L}{c}$  и получим:

$$\Delta L = -V \Delta t = -V \frac{2L}{c}.$$

Тогда

$$\frac{\Delta L}{L} = -2 \frac{V}{c},$$

а с учетом  $\frac{\Delta L}{L} = -\frac{\Delta \nu}{\nu}$  получим:

$$\frac{\Delta \nu}{\nu} = 2 \frac{V}{c} \text{ — это относительное изменение частоты резонатора лазера за}$$

время движения зеркала. Это изменение в точности совпадает с изменением частоты света при отражении от набегающего зеркала лазера. То есть отраженное зеркалом световое поле изменяется по частоте и оказывается в резонансе с новой частотой резонатора, которая окажется у резонатора после движения зеркала в течение времени  $\frac{2L}{c}$ . При этом не возникает никаких переходных процессов, и, следовательно, частоту генерации лазера можно переключить очень быстро.

Напряжение на кристалле KDP также желательно линейно изменять на протяжении времени  $\frac{2L}{c}$ .

-----

Ранее мы упоминали о гетеродинном приеме сигналов ЗСП и фотонного эха при штарковском переключении частоты. Обсудим теперь преимущества гетеродинного приема сигналов.

Направим на приемник света две световые волны с частотами  $\omega_1$  и  $\omega_2$ . Пусть амплитуда одной волны гораздо больше амплитуды второй волны  $\varepsilon_{01} \gg \varepsilon_{02}$ . Этот способ регистрации называется гетеродинным приемом слабого сигнала.

Рассмотрим интенсивность суммарной волны, которая пропорциональна среднему по времени квадрату напряженности суммарного светового поля:

$$I \sim \left\langle E^2(t) \right\rangle_t = \left\langle \left( \varepsilon_{01} \cos(\omega_1 t) + \varepsilon_{02} \cos(\omega_2 t) \right)^2 \right\rangle_t =$$

$$= \varepsilon_{01}^2 \left\langle \cos^2(\omega_1 t) \right\rangle_t + \varepsilon_{02}^2 \left\langle \cos^2(\omega_2 t) \right\rangle_t + \varepsilon_{01} \varepsilon_{02} \left\langle \cos((\omega_1 + \omega_2)t) \right\rangle_t + \varepsilon_{01} \varepsilon_{02} \left\langle \cos((\omega_1 - \omega_2)t) \right\rangle_t$$

Здесь квадрат каждого косинуса в среднем равен половине, а косинус суммарной оптической частоты в среднем равен нулю. Косинус разностной частоты усреднять не следует, если эту разностную частоту позволяет зарегистрировать быстродействие приемника света. Тогда получим

$$I \sim \frac{1}{2} \varepsilon_{01}^2 + \frac{1}{2} \varepsilon_{02}^2 + \varepsilon_{01} \varepsilon_{02} \cos((\omega_1 - \omega_2)t).$$

Предположим теперь, что первая световая волна имеет постоянную амплитуду, а амплитуда второй световой волны мала и представляет собой интересующий нас сигнал ЗСП или фотонного эха. В таком случае в фототоке приемника образуются три слагаемых пропорциональные трем слагаемым интенсивности света, падающего на приемник:

$$I \sim \frac{1}{2} \varepsilon_{01}^2 + \frac{1}{2} \varepsilon_{02}^2 + \varepsilon_{01} \varepsilon_{02} \cos((\omega_1 - \omega_2)t).$$

Здесь первое слагаемое постоянно и не несет никакой информации. Второе слагаемое  $\frac{1}{2} \varepsilon_{02}^2$  пропорционально интенсивности интересующего нас сигнала, третье слагаемое фототока на частоте  $\omega_1 - \omega_2$  имеет амплитуду пропорциональную амплитуде интересующей нас волны и тоже несет информацию об интересующем нас сигнале. С учетом неравенства  $\varepsilon_{01} \gg \varepsilon_{02}$  оказывается, что третье слагаемое гораздо больше второго. Следовательно, постоянная засветка приемника света световой волной с большой амплитудой  $\varepsilon_{01}$  позволяет регистрировать оптические сигналы с малой амплитудой  $\varepsilon_{02}$ . Отношение амплитуд третьего  $\varepsilon_{01} \varepsilon_{02}$  и второго  $\varepsilon_{02}^2$  слагаемых показывает, что гетеродинный прием позволяет увеличить слабый сигнал в  $\frac{\varepsilon_{01}}{\varepsilon_{02}}$  раз.

Множественное увеличение в  $\frac{\varepsilon_{01}}{\varepsilon_{02}}$  раз электрического сигнала с приемника света позволяет регистрировать слабые сигналы так, чтобы они не тонули в шумах приемника. То есть гетеродинный прием сигнала позволяет многократно увеличить отношение сигнал / шум.

### **Быстрое адиабатическое прохождение.**

Название явления нужно понимать, как быстрое, но медленное (адиабатические инварианты) прохождение. Имеется ввиду, что рассматриваемый процесс быстрый по сравнению с одним характерным временем задачи  $\frac{1}{\gamma}$ , но медленный по сравнению с другим временем  $\frac{1}{R}$ .



Будем называть свипированием частоты (swipe — удар) такое достаточно быстрое сканирование частоты света, при котором частота света проходит диапазон, в котором линия поглощения помещается вместе со своими достаточно далекими крыльями.

Рассмотрим с помощью вектора Блоха, что происходит со средой при свипировании частоты света.

Пусть до взаимодействия со светом среда не инвертирована, и вектор Блоха направлен вертикально вниз.

При взаимодействии со светом вектор Блоха вращается вокруг вектора  $\vec{R}_\Omega = \begin{pmatrix} R \\ 0 \\ \Omega \end{pmatrix}$  в левую сторону. Здесь  $R = \frac{p\varepsilon_0}{\hbar}$  — частота Раби,  $\Omega = \omega - kV_z - \omega_{21}$

— расстройка частоты светового поля относительно частоты перехода в системе отсчета молекулы.

Как изменяется вектор  $\vec{R}_\Omega$  при свипировании частоты? Расстройка  $\Omega$  изменяется от  $-\infty$  до  $+\infty$  или наоборот. При таком изменении третьей координаты вектора  $\vec{R}_\Omega$  можно сказать, что сам вектор как бы поворачивается на угол  $\pi$  при одновременном изменении длины вектора в процессе поворота.

Пусть для определенности свипирование происходит при изменении  $\Omega$  от  $-\infty$  до  $+\infty$ . Тогда в начальный момент времени третья координата вектора  $\vec{R}_\Omega$  равна  $\Omega = -\infty$ , и сам вектор  $\vec{R}_\Omega$  направлен вертикально вниз, как и вектор Блоха  $\vec{B}$ .

Если вектор  $\vec{R}_\Omega$  поворачивается достаточно медленно, а вектор Блоха  $\vec{B}$ , соответственно, вращается вокруг вектора  $\vec{R}_\Omega$  достаточно быстро, то вектор Блоха  $\vec{B}$  во все время свипирования остается рядом с вектором  $\vec{R}_\Omega$ .

В результате такого свипирования вектор Блоха поворачивается снизу вверх, как и вектор  $\vec{R}_\Omega$ .

Рассмотрим теперь одно свипирование, но в обратном направлении, при изменении  $\Omega$  от  $+\infty$  до  $-\infty$ . Начальное состояние вектора Блоха по-прежнему будем считать таким, что вектор Блоха направлен вертикально вниз.

Вектор  $\vec{R}_\Omega$  теперь при свипировании поворачивается сверху вниз, но вектор Блоха снова поворачивается снизу вверх, так как можно считать, что он вращается в правую сторону вокруг вектора  $-\vec{R}_\Omega$ , а вектор  $-\vec{R}_\Omega$  поворачивается снизу вверх.

То есть при свипировании частоты в любую сторону, если вначале процесса вектор Блоха направлен вниз, то в конце процесса вектор Блоха будет направлен вверх.

-----

Такой поворот вектора Блоха похож на результат воздействия на среду  $\pi$  импульса света. И действительно, поворот снизу вверх равен повороту на угол

$\pi$  вокруг оси 1. Но есть и отличие свипирования от воздействия  $\pi$  импульса света.

Разница в том, что свипирование частоты нечувствительно к амплитуде света. Результат свипирования не зависит от амплитуды светового поля, если амплитуда остается достаточно большой. Если же рассматривать воздействие на среду светового  $\pi$  импульса, то при увеличении амплитуды света вдвое  $\pi$  импульс света превращается в  $2\pi$  импульс, результат воздействия которого на среду совсем другой (никакой).

-----

Рассмотрим теперь, что будет происходить с вектором Блоха, если провести два свипирования с небольшой задержкой по времени.

Мы выяснили, что от направления свипирования результат не зависит, поэтому второе свипирование можно проводить в обратном направлении.

При первом свипировании вектор  $\vec{R}_\Omega$  поворачивается снизу вверх, и вектор Блоха поворачивается вместе с ним. Пусть второе свипирование происходит сразу за первым без задержки по времени. Тогда при втором свипировании вектор  $\vec{R}_\Omega$  поворачивается сверху вниз, и вектор Блоха возвращается вниз вместе с ним.

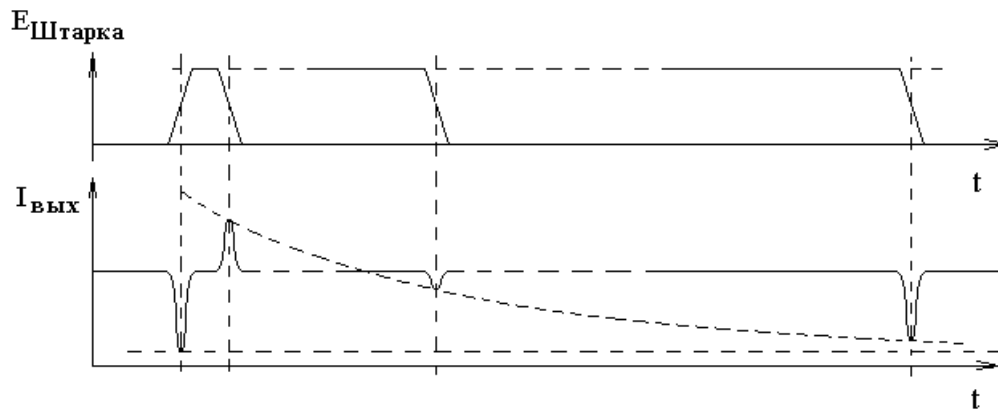
Если же второе свипирование произвести после значительной задержки по времени, то за время этой задержки вектор Блоха из состояния вверх может вернуться в обычное для него состояние вниз в результате релаксации. Первое свипирование будет забыто. В таком случае второе свипирование снова переводит вектор Блоха снизу вверх, а не сверху вниз, как при нулевой задержке между двумя свипированиями.

-----

Свипирование удобно производить штарковским переключением частоты. Ниже на рисунке приведена оптическая схема эксперимента:



На следующем рисунке приведены две зависимости. Первая зависимость — это зависимость напряженности штарковского поля от времени с тремя вариантами временной задержки между двумя свипированиями. Вторая зависимость — это зависимость интенсивности света на приемнике, как функция времени.



На левом краю первого графика находится линейный рост штарковского поля  $E_{Штарка}$ , которое протягивает линию поглощения мимо неподвижной частоты генерации лазера. При этом для набора молекул с каждым значением лучевой скорости  $V_z$  в результате первого свипирования вектор Блоха переходит из состояния направленности вниз в состояние направленности вверх. Среда запасает энергию. Эта энергия забирается из проходящего среду светового поля. При этом мощность света на приемнике повторяет доплеровский контур линии поглощения.

Если второе свипирование происходит сразу после первого, то вектор Блоха возвращается сверху вниз. При этом среда отдает энергию, запасенную при первом свипировании, и свет усиливается. Зависимость интенсивности на выходе кюветы опять повторяет контур доплеровской линии поглощения, только вместо поглощения света происходит его усиление.

На рисунке приведены три возможных варианта времени второго свипирования.

Если второе свипирование происходит с большой задержкой, то вектор Блоха успевает вернуться вниз в результате релаксации безо всякого взаимодействия со светом. В этом случае второе свипирование снова переводит вектор Блоха снизу вверх, а среда поглощает свет.

При некоторой промежуточной длительности задержки между двумя свипированиями импульс в интенсивности света на выходе кюветы меняет знак.

Амплитуда этого импульса, как функция задержки между двумя свипированиями имеет вид:

$$S \sim (e^{-\gamma_1 \tau} + e^{-\gamma_2 \tau} - 1).$$

Измерение этой зависимости позволяет определить константы затухания  $\gamma_1$  и  $\gamma_2$ , а через них получить информацию о молекулярных столкновениях.