

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт
спектроскопии Российской академии наук

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение
высшего образования «Национальный исследовательский университет «Высшая
школа экономики»

На правах рукописи

Лозинг Наталья Анатольевна

Квантово-кинетическая теория фотолюминесценции в приложении к
описанию ансамблей примесных центров в твердых средах с
использованием метода Боголюбова-Борна-Грина-Кирквуда-Ивона

Специальность 1.3.6 – Оптика

Диссертация на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
кандидат физико-математических наук
Гладуш Максим Геннадьевич

Научный консультант:
член-корреспондент РАН,
доктор физико-математических наук
Наумов Андрей Витальевич

Москва, 2022 г.

Оглавление

Введение	3
Глава 1. Метод цепочек ББГКИ в применении к описанию коллективных систем.....	15
1.1 Уравнения ББГКИ для квантовых излучателей и фотонных мод.....	18
1.2 Суммирование по фотонным модам. Переход к полевым величинам	24
Глава 2. Уравнения цепочки ББГКИ для кооперативной системы из двух квантовых излучателей.....	28
2.1 Модель и гамильтониан	30
2.2 Кооперативное управляющее уравнение.....	32
2.3 Полная интенсивность фотолюминесценции	37
2.4 Спектры излучения и поглощения пробного сигнала.....	47
Глава 3. Ансамбль излучателей в диэлектрической среде	55
3.1 Модель. Коллективный ансамбль и локальное поле	59
3.2 Управляющее уравнение для излучателя в ансамбле	61
3.3 Стационарные решения и бистабильность.....	67
3.4 Переходные процессы и переключения	72
Заключение	81
Список литературы.....	84
Приложения. Приложение А. Управляющее уравнение.....	93
Приложение Б. Уравнение для поля $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$	95
Приложение В. Уравнение для оператора $\Phi(\mathbf{r}, t)$	96
Приложение Г. Тензор корреляции $\mathbf{W}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t')$	98
Приложение Д. Полная интенсивность излучения.....	101

Введение

В диссертации исследуются характеристики фотолюминесценции как процесса излучательной релаксации коллективных систем квантовых частиц, находящихся в поле непрерывного лазерного возбуждения. Производится анализ особенностей коллективного взаимодействия частиц внутри ансамбля и обусловленных этими взаимодействиями оптических свойств в зависимости от параметров внешнего возбуждения, собственных параметров излучателей и характеристик среды-носителя, в которой они размещены. В работе рассматриваются два частных случая коллективных ансамблей: малые ансамбли, состоящие из двух неидентичных квантовых излучателей и большие ансамбли идентичных частиц, распределённых внутри диэлектрической среды. Для теоретического описания этих двух случаев предлагается оригинальный подход, позволяющий согласованным и самодостаточным образом исследовать эволюцию атомноподобных систем и производить расчет их оптических спектров с учетом коллективных эффектов, состоящих, главным образом, в возникновении диполь-дипольных взаимодействий на различных масштабах. В данной работе развивается квантово-кинетический формализм, основанный на решении согласованных уравнений для материальной и полевой подсистем, получаемых из цепочки уравнений Боголюбова-Борна-Грина-Кирквуда-Ивона (ББГКИ) для одночастичных матриц плотности и многочастичных корреляционных операторов. Из системы уравнений ББГКИ выводится основное кинетическое уравнение – «кооперативное управляющее уравнение» для матрицы плотности излучателя или системы излучателей, которое определяет особенности процесса фотолюминесценции. Управляющее уравнение представляет собой одно уравнение из системы связанных уравнений, но является независимым от остальной части цепочки уравнений ББГКИ. Эта оставшаяся часть зависит от матриц плотности излучателей и обеспечивает расчет полной интенсивности фотолюминесценции и спектра излучения. Данный метод является наиболее полным и последовательным

подходом к изучению систем многих частиц. Главным его преимуществом является возможность изучения свойств отдельных частиц под влиянием самосогласованного поля, создаваемого всей системой и внешним возбуждением.

Актуальность исследования

Излучение света за счет фотолюминесценции коллективных систем атомных или молекулярных частиц было предметом обширных исследований в квантовой оптике и смежных областях в течение нескольких десятилетий. Ансамбли излучателей света, взаимодействующие с внешним излучением, могут проявлять кооперативные эффекты, проявляющиеся в фотолюминесценции [1]. Впервые исследования в этой области были произведены Дике [2], который показал, что спонтанный распад возбужденных состояний ансамбля атомов, расположенных на расстоянии друг от друга, меньшем длины волны излучения, может происходить коллективно вследствие самонаводящихся корреляций между частицами в ансамбле в процессе распада. Далее было показано, что коллективное поведение в этом и во многих других случаях является результатом диполь-дипольного межчастичного взаимодействия. Кроме изменения динамики спонтанного распада, диполь-дипольное взаимодействие вызывает новые резонансы в спектрах излучения и поглощения [3–8], что связано с возможностью одновременного возбуждения атомов, а также обменом возбуждениями [3,9,10]. Также проявляются явления сверх- и субизлучения [11–18], которые следуют из образования запутанных симметричных и антисимметричных собственных состояний, которые представляют собой соответственно быстро и медленно затухающие коллективные возбуждения.

Рост интереса к кооперативным эффектам в малых ансамблях был вызван достижениями в области спектроскопии одиночных излучателей, таких как одиночные органические молекулы [19,20], квантовые точки [21], ионы [22]. Эти достижения позволили различать в пространстве с субволновым разрешением и характеризовать две и более флуоресцирующих частицы. Наблюдение за одиночными квантовыми излучателями достигло очень высокой эффективности и

точности вскоре после того, как стало возможной регистрацией бесфононных линий [23]. В большинстве случаев бесфононные линии можно обнаружить и зарегистрировать только при низких температурах, когда колебательные возбуждения достаточно «заморожены», а излучатели можно рассматривать как квазидвухуровневые системы с яркой флуоресценцией. О демонстрации диполь-дипольного взаимодействия двух органических молекул в тонких пленках при низких температурах сообщалось в [7] и [8]. В этих работах приводятся измеренные спектры возбуждения фотолюминесценции пары органических молекул с тремя выраженными максимумами (резонансами с длиной волны возбуждающего лазера). В то же время разрабатываются новые методы измерения малых расстояний с высокой точностью. Например, новый экспериментальный метод прямого измерения расстояния (до 20-10 нм) между двумя полупроводниковыми коллоидными квантовыми точками на флуоресцентных изображениях был описан в [24–26]. Кроме того, развитие технологий приготовления образцов для исследования позволяет управлять частицами и размещать их в одно-, двух- и трехмерных структурах на микро- и нано-масштабах. В настоящее время практикуются применение множества различных по физической природе методов удержания небольших групп излучателей в рамках желаемой геометрии. Например, это ионы в магнитооптических ловушках [18-19], искусственные атомы в оптоволокне [29], квантовые точки в пленках [30] и т.д. Таким образом, для обеспечения дальнейшего прогресса в области спектроскопии и микроскопии одиночных излучателей требуется развитие теоретического описания кооперативных ансамблей квантовых излучателей с целью определения специфических свойств их фотолюминесценции, свидетельствующих о наличии процессов взаимодействия излучателей друг с другом и с окружением.

Система из двух связанных источников света является частным случаем кооперативного ансамбля. На сегодняшний день пары органических молекул и полупроводниковых квантовых точек считаются одними из предпочтительных кандидатов для создания самых маленьких, наиболее теоретически изученных и стабильных кооперативных систем. Было проведено множество исследований

динамики, запутывания и флуоресценции парных излучателей (см., например, [31]). Начиная с первых работ [32] и [33], наибольшее количество публикаций было посвящено изучению кооперативного спонтанного распада. Помимо этих работ существуют также исследования, посвященные изучению кооперативных пар при наличии непрерывного возбуждения [34–36]. Однако, несмотря на долгую историю исследований, все развитые теории имеют ограничения или не учитывают важных обстоятельств, неизбежно определяемых экспериментальными условиями. Значительная часть исследований была сосредоточена на частных случаях, что позволяло либо получить аналитические выражения, либо смоделировать конкретную ситуацию. Так, в работах [6,37] были рассчитаны общая интенсивность флуоресценции, спектры флуоресценции и корреляционные функции для случаев бегущей и стоячей волн возбуждения, но при этом был рассмотрен только случай двух одинаковых атомов и исследовались только частные варианты геометрии взаимодействия частиц с возбуждением. Таким образом, несмотря на множество исследований, полного теоретического исследования пары излучателей в непрерывном лазерном поле в произвольной геометрии для неоднородных излучателей проведено не было.

Для плотных ансамблей большого числа частиц характерны иные кооперативные явления. Например, одним из видов кооперативных явлений в присутствии непрерывного внешнего возбуждения является безрезонаторная (полностью внутренняя) оптическая бистабильность. Бистабильностью ансамбля квантовых излучателей во внешнем поле называется ситуация, когда при одних и тех же внешних параметрах могут реализоваться два значения населенностей возбужденных состояний. Этот эффект проявляется следующим образом. При адиабатическом увеличении интенсивности возбуждения интенсивность люминесценции плавно увеличивается, затем, при достаточной мощности падающего поля, происходит резкий скачок выходящей интенсивности. Если же затем плавно уменьшать интенсивность падающего поля, то значение интенсивности излучения будет плавно уменьшаться и при определенном значении интенсивности возбуждения произойдет резкий спад интенсивности излучения.

Таким образом, наблюдаются «переключения» интенсивности излучения между его малым и большим значениями. Возможность возникновения оптической бистабильности в отсутствие внешней обратной связи впервые обсуждалась как результат межатомного взаимодействия (диполь-дипольного) [38]. Эта идея была далее развита в ряде работ [39–41]. Это явление основано на кооперативной природе взаимодействия между атомами и полем и на сильной нелинейности этого взаимодействия [38]. Например, окружающие частицы создают локальное поле, действующее на отдельный атом, отличное от макроскопического среднего. Это отличие определяется поправкой, которая обеспечивает перенормировку резонансной частоты [42], что и является причиной бистабильности. Бистабильность в оптическом отклике системы имеет практический интерес, так как наличие бистабильности создает потенциальную возможность для построения систем оптической логики и замещения электронов фотонами в системах данных. Возможность применения этого эффекта в оптических переключателях стимулировало появление большого числа исследований. Помимо интереса к оптической бистабильности с точки зрения практических применений как оптического аналога транзистора, оптического счетчика или элемента оптической памяти, демонстрация этого явления вызвала значительный интерес с фундаментальной точки зрения как довольно явный пример спонтанного упорядочения в открытой, стационарной системе, взаимодействующей со светом. Для обеспечения фиксированного положения в пространстве как парных излучателей, так и плотных ансамблей самым очевидным способом является размещение их внутри прозрачного материала. Однако, в таком случае могут проявляться эффекты взаимодействия частиц-излучателей с материалом-носителем. Это взаимодействие может быть существенным и заметно влиять на характеристики фотолюминесценции. Одним из результатов такого взаимодействия является наличие локального, действующего на излучатели, поля. Влияние локальных полей может быть достаточно сильным даже в случае однородной и изотропной диэлектрической среды [43].

Цели и задачи работы

Целью данной работы является изучение взаимодействия кооперативных систем квантовых излучателей с непрерывным возбуждающим лазерным полем с учетом влияния эффективных локальных полей на отдельные излучатели.

Для достижения данной цели были поставлены следующие **задачи**:

1. Разработка согласованного описания взаимодействия материальной и полевой подсистем на основе цепочки уравнений БГКИ для матриц плотности квантовых излучателей и мод квантованного электромагнитного поля, позволяющего производить анализ как динамических характеристик материальной и полевой подсистем, так и спектральных характеристик фотолюминесценции.

2. Получение управляющего уравнения для матрицы плотности парного квантового излучателя в поле непрерывного лазерного возбуждения с учетом диполь-дипольного взаимодействия при произвольной геометрии возбуждения.

3. Получение уравнений для спектра возбуждения, спектра испускания фотолюминесценции и спектра поглощения пробного сигнала пары двухуровневых квантовых излучателей в поле лазерной волны. Произведение численного расчета полученных уравнений для условий экспериментальных измерений, оригинальных и известных из актуальной научной литературы.

4. Получение общей системы уравнений для описания ансамбля неподвижных излучателей, внедренных в диэлектрическую среду, в поле непрерывного лазерного возбуждения. Получение управляющего уравнения для матрицы плотности излучателей и описание динамики их возбужденных состояний.

5. Проведение численного моделирования нелинейной динамики возбужденных состояний системы излучателей и полной интенсивности фотолюминесценции.

6. Проведение анализа пороговых оптических явлений, связанных с нелинейной динамикой возбужденных состояний излучателей.

Научная новизна

Поставленные задачи являются новыми и не были решены вплоть до настоящего времени. Впервые выведено основное управляющее уравнение для

матрицы плотности пары неидентичных по частоте и моменту перехода квантовых излучателей с возможностью учета произвольной геометрии схемы возбуждения непрерывным лазерным пучком. Получены уравнения для расчета спектров возбуждения и испускания фотолюминесценции. Произведено моделирование спектров возбуждения фотолюминесценции, воспроизводящее результаты экспериментов с кооперативными парами органических молекул. Также впервые исследована динамика интенсивности излучения большого коллективного ансамбля излучателей в диэлектрической среде при реализации режима безрезонаторной оптической бистабильности, на основании которой предложено объяснение наблюдавшегося в эксперименте явления длительных вспышек интенсивности фотолюминесценции микрокристалла алмаза с германиевыми центрами окраски. Таким образом, развитые теоретические подходы были успешно применены для описания оригинальных и известных из актуальной научной литературы экспериментальных результатов по лазерной фотолюминесцентной спектроскопии.

Теоретическая и практическая значимость

Представлен оригинальный подход к выводу управляющего уравнения для описания динамики взаимодействующих систем с внешним лазерным излучением и расчету спектров возбуждения и излучения. Данный подход согласованно учитывает различные процессы коллективного взаимодействия излучателей посредством поля излучения. С помощью метода цепочки уравнений ББГКИ для редуцированных матриц плотности можно описать эволюцию атомной системы и электромагнитного поля. Коллективные взаимодействия заложены естественным образом в структуре цепочки и позволяют без феноменологических процедур описывать коллективные эффекты в атомной подсистеме и оптические явления, связанные с ними.

В течение последних десятилетий область исследования взаимодействия атома с лазером развивалась стремительными темпами и открыла множество новых и интересных физических явлений. С ростом возможностей управления

одиночными квантовыми системами наблюдается прогресс в квантовой оптике. Это достижение не только дает новое понимание фундаментальных процессов, но и составляет необходимое требование для областей квантовых вычислений и квантовой теории информации. Эта область квантовой физики направлена на ускорение классических вычислений и безопасную связь с помощью квантовой криптографии. Важным ресурсом для многих схем квантовых вычислений и квантовой информации является запутанность, которая появляется при диполь-дипольном взаимодействии. Построение запутанных состояний стало отдельной темой в современных исследованиях квантовых вычислений и квантовой информатики [44–46], а субизлучательные состояния исследуются для различных конфигураций излучателей и являются кандидатами в элементы оптических устройств и устройств квантовой памяти [18,47–50]. Показанная в данной работе возможность оптических пороговых явлений, обусловленных коллективными эффектами, может быть актуальна с точки зрения разработок систем оптических переключателей и оптической логики.

Положения, выносимые на защиту

На защиту выносятся следующие положения:

1. Система уравнений ББГКИ, включающая уравнения для одночастичных матриц плотности и корреляционных матриц материальных частиц и фотонных мод, полностью описывает процесс фотолюминесценции, включая кооперативные оптические эффекты, и обеспечивает расчет кинетики состояний системы излучателей, спектров излучения и возбуждения фотолюминесценции, а также спектра поглощения слабого пробного сигнала.

2. Модель двухуровневого излучателя в применении к описанию двух неодинаковых по моментам и частотам переходов квантовых частиц описывает наблюдаемые в экспериментах спектральные зависимости фотолюминесценции двух диполь-дипольно спутанных органических примесных молекул.

3. Модель равномерно распределенных в пространстве квантовых излучателей внутри слабопоглощающей диэлектрической среды описывает

нелинейную динамику их возбужденных состояний, заключающуюся в квазипериодическом изменении интенсивности фотолюминесценции.

Степень достоверности

Достоверность научных результатов обеспечивается использованием строгих математических методов квантовой механики и квантовой оптики, согласием частных случаев с другими теоретическими работами, а также экспериментальными результатами, имеющимися на данный момент в литературных источниках.

Личный вклад автора

Все изложенные в диссертации результаты получены лично автором, либо при его непосредственном участии.

Апробация результатов

Результаты работы докладывались на международных научных конференциях:

1. 27th annual International Laser Physics Workshop LPHYS18 (July 16-20, 2018, Nottingham, UK) N.A. Lozing, M.G. Gladush, I.Yu. Eremchev, A.V. Naumov, Luminescent Microscopy of Single Pairs of Quantum Dots with a Nanometer Spatial Resolution; N.A. Lozing, M.G. Gladush, I.Yu. Eremchev, Slowly Switching Fluorescence Intensity from an Ensemble of Quantum Emitters in a Dielectric Host.
2. 13th International Scientific Conference “Hole Burning, Single Molecule, and Related Spectroscopies: Science and Applications” HBSM-2018 (August 6-12, 2018, Suzdal - Moscow, Russia) N.A. Lozing, M.G. Gladush, I.Yu. Eremchev, E.A. Ekimov, A.V. Naumov, Spontaneous transitions to enhanced fluorescence for GeV centers in a single microcrystalline diamond.
3. XXII Международная Молодежная Научная Школа по когерентной оптике и оптической спектроскопии КООС2018 (9-11 октября 2018, Казань) Н.А. Лозинг, М.Г. Гладуш, И.Ю. Еремчев, Спектры испускания и возбуждения люминесценции пары двухуровневых излучателей.
4. XIII международные чтения по квантовой оптике IWQO2019 (г. Владимир, 9

– 14 сентября 2019 г.) Н.А. Лозинг, Е.А. Смирнова, М.Г. Гладуш, Применение цепочек ББГКИ для описания люминесценции парных квантовых излучателей.

5. XXIII международная молодежная научная школа "Когерентная оптика и оптическая спектроскопия" (29-31 октября 2019 год, Казань) Лозинг Н.А., Гладуш М.Г., Би- и мультстабильность фотолюминесценции ансамбля квантовых излучателей.

6. Single-Molecule Sensors and NanoSystems International Conference – S3IC 2020, November 9-11, 2020, Barcelona, Spain, Natalia Lozing, Maxim Gladush, Ivan Eremchev, Eugeny Ekimov, Andrey Naumov, Superflares of Photoluminescence from a Microdiamond with GeV Color Centers: a New Possibility for Quantum Sensing?

7. XII международный симпозиум по фотонному эхо и когерентной спектроскопии (ФЭКС-2021) памяти профессора Виталия Владимировича Самарцева, Казань, 25-30 октября 2021 г., Н.А. Лозинг, Е.А. Смирнова, М.Г. Гладуш, Применение цепочек ББГКИ для исследования диполь-дипольного взаимодействия парных квантовых излучателей: методы расчета спектров возбуждения и испускания.

Публикации:

Основные результаты по теме диссертации изложены в 4 статьях в журналах, рекомендованных ВАК:

1. Е.А. Смирнова, Н.А. Лозинг, М.Г. Гладуш, А.В. Наумов, Спектры поглощения пробного сигнала и резонансной флуоресценции для излучателей при их взаимодействии с локальным окружением в прозрачных средах, Оптика и спектроскопия, Т. 130, № 1, С. 151-159 (2022).

2. N.A. Lozing, M.G. Gladush, I.Yu. Eremchev, E.A. Ekimov, A.V. Naumov, Stochastic superflares of photoluminescence from a single microdiamond with germanium-vacancy color centers: A general phenomenon or a unique observation, Phys. Rev. B, Vol. 102, Iss. 6, Art. № 060301(R) (2020).

3. И.Ю. Еремчев, Н.А. Лозинг, А.А. Баев, А.О. Тарасевич, М.Г. Гладуш, А.А. Роженцов, А.В. Наумов, Люминесцентная микроскопия одиночных пар квантовых

точек с нанометровым пространственным разрешением, Письма в ЖЭТФ, Т. 108, № 1, С. 26-34 (2018).

4. И.Ю. Еремчев, Н.А. Лозинг, М.Г. Гладуш, А.А. Баев, А.А. Роженцов, А.В. Наумов, К вопросу об измеряемых флуктуациях интенсивности люминесценции одиночных точечных излучателей: артефакты обработки микроскопических изображений, Известия Российской академии наук. Серия физическая, Т. 82, № 11, С. 1624-1628 (2018).

Объем и структура работы.

Диссертация состоит из введения, трех глав, заключения и пяти приложений. Полный объем диссертации составляет 103 страницы, включая 28 рисунков. Список литературы содержит 97 наименований.

Во введении описаны суть исследования, его цель и решаемые задачи. Приведен обзор научной литературы. Сформулированы защищаемые положения, приведен список работ автора и информация об апробации результатов.

Первая глава содержит описание формализма, применяемого к решению спектроскопических задач. Метод основан на применении квантовых цепочек ББГКИ, модифицированных и адаптированных к решению оптических задач. В этой главе описан общий подход и основные приближения, необходимые для решения цепочек уравнений и получению из них уравнений для измеряемых спектроскопических величин и зависимостей.

Вторая глава посвящена решению основного кинетического - управляющего уравнения для матрицы плотности пары квантовых излучателей с диполь-дипольным взаимодействием. В этой главе приводятся и анализируются численные решения для элементов матрицы плотности системы пары излучателей и численный расчет спектра возбуждения и спектров рассеянного излучения такой системы. Показывается согласие результатов численных расчетов с данными экспериментов по лазерной фотолюминесцентной спектроскопии одиночных молекул в твердых матрицах, оригинальных и известных из литературы.

Третья глава посвящена изучению свойств плотного коллективного ансамбля квантовых излучателей внутри слабо поглощающей диэлектрической среды. В данной главе изучено явление внутренней оптической бистабильности и динамики переходных процессов при переключениях излучающей системы между ее стационарными состояниями. Также в ней продемонстрировано, что развитые и описанные в первой главе теоретические подходы приводят к результатам, согласующимся с результатами оригинальных экспериментов по лазерной фотолюминесцентной спектроскопии микрокристаллов алмаза с центрами окраски типа Ge-вакансия.

В заключении приводится список основных результатов исследования.

Глава 1

Метод цепочек ББГКИ в применении к описанию КОЛЛЕКТИВНЫХ СИСТЕМ

В настоящее время происходит интенсивное развитие и совершенствование техники спектроскопии примесей в плотных газах и различных конденсированных средах - жидкостях и твердых телах. Одними из главных объектов исследования здесь являются флуоресцентные свойства как одиночных примесных центров, так и ансамблей излучателей. Эти свойства существенным образом зависят от характеристик среды, заполняющей пространство между центрами, и близости других оптически активных частиц. Знание таких зависимостей можно использовать для создания устройств оптической логики, конверсии лазерного излучения, генерации неклассических состояний света и других приложений. Особый интерес к некоторым задачам о влиянии окружения на излучающий центр возникает благодаря ярким успехам последних лет в регистрации спектров флуоресценции твердотельных систем. Здесь можно отметить экспериментальные работы по исследованию спектров флуоресценции квантовых точек при низких температурах [51,52] и квантовых точек в микрополости [53], работы по исследованию резонансной флуоресценции одиночных молекул [54] и искусственных атомов [55]. В проведенных работах показано, что при взаимодействии излучателя с полем сам излучатель хорошо описывается в рамках двухуровневой системы. Указанные обстоятельства дают весомые аргументы для дальнейшего развития теории по описанию флуоресцентных свойств ансамблей двухуровневых систем, включающие особенности их излучения в условиях сплошной среды. Это необходимо как для интерпретации наблюдаемых явлений, так и постановки новых экспериментов, основывающихся на регистрации зависимостей интенсивности флуоресценции от частоты поля возбуждения и анализе спектрального состава рассеянного света. Здесь, однако, возникает ряд серьезных сложностей при детальном теоретическом изучении подобных систем.

Во-первых, это многочастичность задачи: большое количество частиц оказывает влияние на поведение отдельно взятого излучателя, что делает невозможным точное теоретическое описание. Во-вторых, изучение спектральных характеристик излучателя, в случае нелинейного его поведения, требует особого подхода к определению спектра излучения в стационарном режиме и, что немало важно в нестационарном режиме, зависящем от времени спектра света, испускаемого излучателем.

Изучение свойств рассеянного излучения, возникающего при распространении резонансной лазерной волны в плотных средах, относится к числу важнейших вопросов квантовой оптики. При большой плотности отклик одного атома на электромагнитное воздействие существенно зависит от присутствия других атомов. Взаимодействие близкорасположенных частиц под воздействием поля приводит к ряду эффектов [56,57]. Исследованию этих эффектов положила начало работа Дике [2], который показал, что в ансамбле атомов с размерами, меньшими длины волны излучения, спонтанный распад может происходить коллективно. К настоящему времени известно, что, кроме изменения динамики спонтанного распада, этот и другие механизмы межатомного взаимодействия способны также заметно модифицировать спектр спонтанного излучения по сравнению с одноатомным случаем. Например, коллективное поведение атомов обеспечивает условия для возникновения дополнительных резонансов в спектрах поглощения и испускания, что связано с возможностью одновременного возбуждения атомов, а также обменом возбуждениями [4,10,31,58]. Появление дополнительных спектральных линий при сверхизлучении впервые обсуждалось в работах [59,60].

Важную роль при изучении распространения электромагнитных волн в плотных средах играет необходимость отличать поле локальное, действующее на отдельный атом, от макроскопического среднего [61,62]. Как известно, поправка, определяющая это отличие, обеспечивает перенормировку резонансной частоты [63]. Ярким проявлением такого эффекта является предсказание и теоретическое описание безрезонаторной оптической бистабильности [64,65], наблюдавшейся

позднее в экспериментах с легированными стеклами и на примесях в кристаллических структурах [66,67]. В связи с этим последние теоретические работы в этой области были направлены на исследование оптически активных систем в окружении частиц диэлектрика. Показано, что в данных условиях значительно расширяются диапазоны значений параметров, определяющих режим бистабильности [68]. Сами эффекты локального поля могут приводить к изменению скорости спонтанного распада [69,70]. Отдельный интерес здесь представляет возможность влияния локального поля на формирование коллективного затухания атомов, приводящего к отклику, аналогичному, по интенсивности, сверхизлучению [70]. Необходимо отметить, что, несмотря на значительное количество опубликованных работ, нельзя считать решенной проблему последовательного вывода выражения для локального поля из начального гамильтониана системы. Для некоторых задач представляется достаточным рассмотрение в рамках полуклассических уравнений Максвелла-Блоха, где в гамильтониане взаимодействия используется именно локальное поле. Действительно, правомерность феноменологического учета поправок подтверждено множеством теорий. Один из современных подходов основан на исключении дельта-функциональной особенности функции Грина для неоднородного уравнения Максвелла. Подробный микроскопический вывод поправок, в том числе для системы излучателей в диэлектрике, был выполнен в [70] исходя из многочастичного гамильтониана и уравнений Гейзенберга для материальных и полевых операторов. Адиабатическое исключение операторов поля и переменных, характеризующих диэлектрическую среду, позволило получить корректные уравнения, которые, однако, описывали динамику только атомной подсистемы.

В этой главе описывается лежащий в основе работы математический метод, который позволяет определять необходимые наблюдаемые физические величины. Этот метод основан на использовании цепочки уравнений ББГКИ [71,72]. Преимуществом метода является возможность изучения свойств отдельных частиц под влиянием самосогласованного поля, создаваемого всей системой. Таким

образом, метод цепочки уравнений ББГКИ является наиболее полным и последовательным подходом к изучению систем многих частиц. Основное применение метода долгое время было связано с решением задач газовой кинетики, физики плазмы и твердого тела [71,73,74]. В задачах взаимодействия излучения с веществом метод ББГКИ также применялся для вычислений процессов атомной релаксации и спектров рассеянного излучения [75,76]. В работе используется подход основного уравнения, который является стандартной техникой для описания взаимодействий атома с полем. Записывая уравнения для редуцированных матриц плотности и корреляционных операторов материальных частиц и мод квантованного поля, получается управляющее уравнение, которое описывает временную эволюцию оператора плотности атомной системы. Поскольку основное уравнение описывает только динамику приведенного оператора атомной плотности, квантовое состояние поля излучения недоступно. Однако, физические наблюдаемые, которые включают корреляционные функции электромагнитного поля, могут быть выражены через корреляционные функции атомных операторов. Поскольку атомные корреляционные функции могут быть определены с помощью основного уравнения, обычно не требуется определять квантовое состояние поля излучения.

1.1 Уравнения ББГКИ для квантовых излучателей и фотонных мод

Эволюция системы, включающей излучатели и поле, описывается многочастичной матрицей плотности $\rho(t)$, которая подчиняется уравнению фон Неймана:

$$i\hbar \frac{d\rho}{dt} = [\hat{H}, \rho], \quad (1.1)$$

где \hat{H} - полный гамильтониан системы. Здесь используются общепринятые обозначения для мнимой единицы, приведенной постоянной Планка и коммутаторных скобок. Гамильтониан \hat{H} состоит из двух частей: $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}$, где \hat{H}_0 - энергия свободных частиц $\hat{H}_0 = \sum_a \hat{H}_a + \sum_f \hat{H}_f$, где индекс a нумерует все материальные частицы, f - моды поля, а \hat{V} - оператор взаимодействия.

При помощи матрицы плотности можно описывать состояния подсистем составных (многочастичных) квантовых систем через редуцированные матрицы плотности, которые могут быть получены из полной матрицы плотности путем взятия частичного следа:

$$\rho_{\{S\}} = Tr_{\{S_0\}}\rho,$$

где $\{S\}$ и $\{S_0\}$ - произвольные наборы элементов системы такие, что $\{S + S_0\}$ является полным набором фотонов и материальных частиц.

Из уравнения (1.1) можно получить управляющее уравнение для материальной матрицы плотности, а также уравнений для расчета наблюдаемых физических величин. Для этого уравнение (1.1) заменяется эквивалентной цепочкой уравнений для приведенных матриц плотности излучающей системы ρ_a , мод поля ρ_f и многочастичных матриц плотности более высокого порядка:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} \rho_a - [\hat{H}_a, \rho_a] &= \sum_f Tr_f [\hat{V}_{af}, \rho_{af}], \\ i\hbar \frac{d}{dt} \rho_f - [\hat{H}_f, \rho_f] &= \sum_a Tr_a [\hat{V}_{af}, \rho_{af}], \\ i\hbar \frac{d}{dt} \rho_{af} - [\hat{H}_a + \hat{H}_f + \hat{V}_{af}, \rho_{af}] &= \sum_{f' \neq f} Tr_{f'} [\hat{V}_{af'}, \rho_{aff'}] + \sum_{a' \neq a} Tr_{a'} [\hat{V}_{a'f}, \rho_{aa'f}], \\ i\hbar \frac{d}{dt} \rho_{ff'} - [\hat{H}_f + \hat{H}_{f'}, \rho_{ff'}] &= \sum_a Tr_a [\hat{V}_{af} + \hat{V}_{af'}, \rho_{aff'}], \\ &\dots \end{aligned} \tag{1.2}$$

Из системы (1.2) видно, что уравнение для матрицы плотности n частиц входит матрица плотности $n+1$ частиц. Таким образом, мы получаем бесконечную систему связанных уравнений БГКИ.

Далее удобно заменить многочастичные матрицы плотности на суперпозицию произведения одночастичных матриц плотности и соответствующих корреляционных операторов с помощью кластерного

разложения согласно принципу ослабления корреляций [71,73] следующим образом:

$$\begin{aligned}\rho_{ff'} &= \rho_f \rho_{f'} + g_{ff'}, & \rho_{af} &= \rho_a \rho_f + g_{af} \\ \rho_{aff'} &= \rho_a \rho_f \rho_{f'} + \rho_a g_{ff'} + \rho_f g_{af'} + \rho_{f'} g_{af} + g_{aff'}, \\ & \dots\end{aligned}$$

Операторы корреляции удовлетворяют условию $Tr_{\{y\}} g_{\{x\}} = 0, \{y\} \in \{x\}$. Произведение одночастичных матриц плотности описывает случай слабой корреляции между частицами. Многочастичные операторы соответствуют пределу сильно скоррелированных частиц в результате их взаимодействия. Для подсистем из трех частиц допускаются промежуточные состояния с сильными парными корреляциями и слабым взаимодействием с ними третьей частицы. Подставляя эти разложения в систему (1.2), получится уравнение для материальной частицы

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho_a - [\bar{H}_a, \rho_a] = \sum_f Tr_f [\hat{V}_{af}, g_{af}] \quad (1.3)$$

и бесконечное число уравнений для мод поля

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho_f - [\bar{H}_f, \rho_f] = \sum_a Tr_a [\hat{V}_{af}, g_{af}]. \quad (1.4)$$

Левая часть уравнений (1.3) и (1.4) содержит эффективные операторы энергии. Они представляют собой суммы энергии свободных частиц и потенциалов Хартри, которые являются частными квантово-механическими средними значениями по отношению к конкретным частицам:

$$\begin{aligned}\bar{H}_a &= \hat{H}_a + \sum_f \langle \hat{V}_{af} \rangle_f, \\ \bar{H}_f &= \hat{H}_f + \sum_a \langle \hat{V}_{af} \rangle_a,\end{aligned}$$

Среднее значение оператора $\langle \hat{O} \rangle_S = Tr_S \hat{O} \rho_S$ определяется через взятие следа от произведения оператора \hat{O} на оператор матрицы плотности ρ по индексу S. Эти

потенциалы обеспечивают связь первого порядка между материальными частицами и полем. В уравнении (1.3) они отражают энергию взаимодействия между каждым излучателем и средним электрическим полем, тогда как в уравнениях (1.4) этот потенциал относится к взаимодействию каждой моды поля со средним индуцированным дипольным моментом. Связь второго порядка возникает из правых частей, где оба уравнения содержат корреляцию излучатель-поле $g_{\{a\}f}$ и описывают вклад квантовых эффектов и некогерентных процессов.

Уравнение для g_{af} выглядит следующим образом:

$$\hbar \frac{d}{dt} g_{af} - [\bar{H}_a + \bar{H}_f, g_{af}] + \hat{S} = \hat{I} + \hat{L} + \hat{\Pi} + \hat{C}. \quad (1.5)$$

Коммутатор в левой части содержит те же операторы энергии, что и в уравнениях (1.3) и (1.4). Оператор \hat{S} объединяет поправки к потенциалам Хартри, которые являются тремя коммутаторами:

$$\hat{S} = [\langle \hat{V}_{af} \rangle_a + \langle \hat{V}_{af} \rangle_f, g_{af}] + \rho_f Tr_f [\hat{V}_{af}, g_{af}] + \rho_a Tr_a [\hat{V}_{af}, g_{af}].$$

Четыре оператора справа представляют собой иерархическую структуру и отражают то, как корреляция излучатель-поле связана с матрицами плотности и корреляциями более высокого порядка:

$$\hat{I} = [\bar{V}_{af}, \rho_a \rho_f],$$

$$\hat{L} = [\bar{V}_{af}, g_{af}],$$

$$\hat{\Pi} = \sum_{f' \neq f} Tr_{f'} [\hat{V}_{af}, \rho_a g_{ff'}] + \sum_{a' \neq a} Tr_{a'} [\hat{V}_{a'f}, \rho_f g_{aa'}],$$

$$\hat{C} = \sum_{f' \neq f} Tr_{f'} [\hat{V}_{af}, g_{aff'}] + \sum_{a' \neq a} Tr_{a'} [\hat{V}_{a'f}, g_{aa'f}],$$

Эта иерархия соответствует формальному представлению ББГКИ, описанному в [71]. Первый оператор \hat{I} представляет собой чистую неоднородность, образованную операторами порядков ниже, чем g_{af} , в его группу собраны

слагаемые, образованные операторами более низких порядков, чем оператор g_{af} (одночастичные матрицы плотности). Он содержит операторы взаимодействия V_{if} скорректированные соответствующими компонентами потенциалов Хартри:

$$\bar{V}_{af} = \hat{V}_{af} - \langle \hat{V}_{af} \rangle_a - \langle \hat{V}_{af} \rangle_f.$$

Оператор \hat{L} однороден относительно g_{af} и собирает так называемые лестничные неоднородные слагаемые, представленные суперпозициями матриц плотности и корреляционных операторов. Это коммутаторы между квантово-механическими взаимодействиями излучателей с полевой модой и оператором корреляции. Этот член имеет более высокий порядок по сравнению с левой частью уравнения (1.5). Другие операторы представляют собой неоднородные слагаемые, которые обеспечивают связи с другими типами корреляций. Оператор $\hat{\Pi}$ – обобщенный поляризационный член, который определяет корреляции между другими частицами. Оператор $\hat{\Pi}$ представляет собой набор слагаемых, описывающих вклад корреляций между двумя различными модами поля. Эти слагаемые являются основными для учета радиационного затухания атомов и описания некогерентного рассеяния излучения. Слагаемое \hat{C} представляет собой неоднородность высшего порядка, то есть содержит трехчастичную корреляцию, которая является связью с остальной частью цепочки ББГКИ.

Из уравнения (1.5) следует, что необходимо учитывать фотон-фотонные корреляции. Соответствующие уравнения, следуя приведенной выше структуре, имеют вид:

$$i\hbar \frac{d}{dt} g_{ff'} - [\bar{H}_f + \bar{H}_{f'}, g_{ff'}] = \hat{\Pi}' + \hat{C}', \quad (1.6)$$

где

$$\hat{\Pi}' = \sum_a Tr_a [\hat{V}_{af}, \rho_f g_{af'}] + \sum_a Tr_a [\hat{V}_{af'}, \rho_{f'} g_{af}],$$

$$\hat{C}' = \sum_a Tr_a [\hat{V}_{af} + \hat{V}_{af'}, g_{aff'}].$$

Для множества физически значимых начальных состояний поля излучения оправдано введение ряда приближений, которые значительно упрощают уравнение движения для атомной системы. Необходимо разрешить систему уравнений относительно атомной матрицы плотности ρ_a , поэтому воспользуемся некоторыми приближениями и таким образом оборвем цепочку уравнений, чтобы система стала замкнутой. Для целей настоящего исследования достаточно положить $\hat{L} = \hat{C} = \hat{C}' = 0$. Это выходит дальше приближения Борна и позволяет воспользоваться преимуществом построения иерархии либо в поляризованном, либо в лестничном приближении. В любом случае получается замкнутая система уравнений для приведенных матриц плотности и корреляции, и, следовательно, можно приступить к решению самосогласованной задачи, задав необходимые начальные условия. Обрыв цепочки производится в рамках обобщенного поляризованного приближения [71], учитывающего корреляции двух материальных квантовых частиц с отдельными модами поля и корреляции бесконечного числа пар полевых мод между собой. Выбранное приближение не является принципиальным ограничением предлагаемого метода, что отличает его от классических методов. Рассматриваемое приближение цепочки содержит уравнения для редуцированных матриц плотности материальной и фотонной подсистем.

Кроме того, удобно перейти в представление взаимодействия, используя следующее преобразование:

$$\tilde{\rho} = \exp\left\{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0 t\right\}\rho\exp\left\{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0 t\right\}.$$

Здесь и далее все операторы используются в данном представлении и записываются без знака \sim .

Таким образом, получается замкнутая система уравнений для матриц плотности и операторов корреляции, которые будут использоваться далее:

$$i\hbar\frac{d}{dt}\rho_a - \sum_f [\langle\hat{V}_{af}\rangle_f, \rho_a] = \sum_f Tr_f[\hat{V}_{af}, g_{af}], \quad (1.7)$$

$$i\hbar\frac{d}{dt}\rho_f - \sum_a [\langle\hat{V}_{af}\rangle_a, \rho_f] = \sum_a Tr_a[\hat{V}_{af}, g_{af}], \quad (1.8)$$

$$\begin{aligned}
i\hbar \frac{d}{dt} g_{af} - [\bar{V}_{af}, \rho_a \rho_f] \\
= \sum_{f' \neq f} Tr_{f'} [\hat{V}_{af'}, \rho_a g_{ff'}] + \sum_{a' \neq a} Tr_{a'} [\hat{V}_{a'f}, \rho_f g_{aa'}]
\end{aligned} \quad (1.9)$$

$$\begin{aligned}
i\hbar \frac{d}{dt} g_{ff'} - \sum_a [\langle \hat{V}_{af} \rangle_a + \langle \hat{V}_{af'} \rangle_a, g_{ff'}] \\
= \sum_a Tr_a [\hat{V}_{af}, \rho_f g_{af'}] + \sum_a Tr_a [\hat{V}_{af'}, \rho_{f'} g_{af}].
\end{aligned} \quad (1.10)$$

Для того чтобы найти управляющее уравнение для материальной матрицы плотности, необходимо подставить формальные решения уравнений (1.8) - (1.10) в (1.7).

Все физические явления, которые обсуждаются в последующих главах этой диссертации, требуют модели взаимодействия атомов с квантованным электромагнитным полем.

1.2 Суммирование по фотонным модам. Переход к полевым величинам

Оператор $\hat{V} = \sum_{a,f} \hat{V}_{af}$ описывает взаимодействие каждого излучателя с модами электромагнитного поля, которое рассматривается в рамках электрического дипольного приближения, когда $\hat{V}_{af} = -\hat{\mathbf{d}}_a \cdot \hat{\mathbf{E}}_f$ (точка обозначает скалярное произведение векторов), $\hat{\mathbf{d}}_a$ – оператор дипольного момента частицы a , а $\hat{\mathbf{E}}_f$ - оператор моды электрического поля. С учетом выбранного электрического дипольного приближения уравнение (1.7) может быть записано через полевые величины в следующем виде:

$$\frac{d}{dt} \rho_a = \frac{i}{\hbar} [\hat{\mathbf{d}}_a(t) \mathcal{E}(\mathbf{r}_a, t), \rho_a(t)] + \frac{i}{\hbar} [\hat{\mathbf{d}}_a(t) \cdot \hat{\Phi}(\mathbf{r}_a, t)], \quad (1.11)$$

где коммутатор векторных операторов означает $[\hat{\mathbf{a}} \cdot \hat{\mathbf{b}}] = (\hat{\mathbf{a}} \cdot \hat{\mathbf{b}}) - (\hat{\mathbf{b}} \cdot \hat{\mathbf{a}})$. Здесь $\mathcal{E}(\mathbf{r}, t)$ – эффективное среднее значение поля, которое определяется через однофотонные матрицы плотности ρ_f :

$$\mathcal{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_f Tr_f \{ \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \rho_f(t) \} = \sum_f \mathcal{E}_f(\mathbf{r}, t). \quad (1.12)$$

Аналогично вводится определение поля $\hat{\Phi}(\mathbf{r}, t)$, описывающего влияние электромагнитного поля на излучатели посредством атомно-фотонного корреляционного оператора g_{af} :

$$\hat{\Phi}(\mathbf{r}, t) = \sum_f Tr_f \{ \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) g_{af}(t) \} = \sum_f \hat{\Phi}_f(\mathbf{r}, t). \quad (1.13)$$

Полевые коммутационные соотношения определяют тензор Грина распространения электромагнитного поля в вакууме

$$\sum_f [\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \otimes \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}', t')] = -i\hbar \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t'), \quad (1.14)$$

а для положительной и отрицательной частотных составляющих электрического поля $\hat{\mathbf{E}}_f = \hat{\mathbf{E}}_f^+ + \hat{\mathbf{E}}_f^-$:

$$\sum_f [\hat{\mathbf{E}}_f^\pm(\mathbf{r}, t) \otimes \hat{\mathbf{E}}_f^\mp(\mathbf{r}', t')] = -i\hbar \vec{\mathbf{G}}^\pm(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t'), \quad (1.15)$$

где коммутатор в этом случае должен рассматриваться как $[\hat{\mathbf{a}} \otimes \hat{\mathbf{b}}] = \hat{\mathbf{a}} \otimes \hat{\mathbf{b}} - (\hat{\mathbf{b}} \otimes \hat{\mathbf{a}})^T$.

Используя определения (1.12) и (1.14), а также уравнение (1.8) для ρ_f , получается выражения для среднего поля:

$$\mathcal{E}(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}_0(\mathbf{r}, t) + \int_0^t dt' \sum_a \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, t - t') \mathbf{p}_a(t'). \quad (1.16)$$

Поле $\mathcal{E}_0(\mathbf{r}, t) = \sum_f Tr_f \{ \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \rho_f^0 \}$ соответствует начальному значению фотонной матрицы плотности $\rho_f^0 = \rho_f(t = 0)$. Эта часть поля описывает падающее возмущения, действующие на излучатели, а также шумовой фон. Можно предположить ситуацию, когда при $t = 0$ квантованное поле находится в вакуумном состоянии, за исключением одной или нескольких выбранных мод в когерентных состояниях. Это предположение установит наличие падающего лазерного луча. Члены $\mathbf{p}_a(t) = \langle \hat{\mathbf{d}}_a(t) \rangle_a$ представляют собой наведенные дипольные моменты, таким образом, вторая часть в (1.16) представляет собой поле реакции.

Аналогично, используя определение (1.13) для поля $\hat{\Phi}(\mathbf{r}, t)$, уравнение (1.9) для g_{af} и соотношения (1.15), получаем:

$$\begin{aligned} \hat{\Phi}(\mathbf{r}, t) = & \sum_a \int_0^t dt' \{ \vec{\mathbf{G}}^+(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, t - t') \bar{\mathbf{d}}_a(t') \rho_a(t') \\ & + \vec{\mathbf{G}}^-(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, t - t') \rho_a(t') \bar{\mathbf{d}}_a(t') \} \\ & + \frac{i}{\hbar} \sum_a \int_0^t dt' \vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_a, t, t') [\hat{\mathbf{d}}_a(t'), \rho_a(t')], \end{aligned} \quad (1.17)$$

$$\bar{\mathbf{d}}_a = \hat{\mathbf{d}}_a - \mathbf{p}_a.$$

Здесь введено определение тензора корреляции электромагнитного поля:

$$\begin{aligned} \vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t') & = \sum_{f, f' \neq f} \left\{ \langle : \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \otimes \hat{\mathbf{E}}_{f'}(\mathbf{r}', t') : \rangle_f - \langle \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \rangle_f \otimes \langle \hat{\mathbf{E}}_{f'}(\mathbf{r}', t') \rangle_{f'} \right. \\ & \left. + Tr_{ff'} \left(\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \otimes \hat{\mathbf{E}}_{f'}(\mathbf{r}', t') g_{ff'}(t') \right) \right\}, \end{aligned} \quad (1.18)$$

где $: :$ означает нормальный порядок операторов. Этот тензор описывает корреляцию компонент неклассического некогерентного электромагнитного поля и динамическое межмодовое перераспределение фотонов. Следует отметить, что для поля, описываемого набором когерентных состояний, этот тензор будет строго равен нулю. Этот тензор зависит от предыдущих характеристик рассеивателей. Действительно, из (1.8) и (1.10) видно, что ρ_f и $g_{ff'}$ связаны с ρ_a . Это означает, что эти члены в корреляции излучатель-поле обеспечивают петлю обратной связи через рассеянное поле.

Используя различные модели излучателей и поля, из уравнения (1.11) можно получить управляющее уравнение для материальной матрицы плотности, описывающее состояния квантовых излучателей под действием внешнего поля. Таким образом, полученные результаты позволяют утверждать, что система уравнений БГКИ, включающая уравнения для одночастичных матриц плотности и корреляционных матриц материальных частиц и фотонных мод, полностью

описывает процесс фотолюминесценции, включая кооперативные оптические эффекты, и обеспечивает расчет кинетики состояний системы излучателей. Уравнения цепочки БГКИ для матриц плотности фотонных мод и корреляционных матриц содержат полную информацию о состоянии поля излучения и могут быть использованы для вычисления спектров излучения и возбуждения фотолюминесценции, а также спектра поглощения слабого пробного сигнала.

Глава 2

Уравнения цепочки ББГКИ для кооперативной системы из двух квантовых излучателей

Задача о двух объектах с диполь-дипольным взаимодействием долгие годы вызывает интерес. Основной особенностью такой системы является то, что две частицы образуют единую квантовую систему с общими для двух частиц коллективными состояниями. Впервые понятие коллективных состояний для набора двухуровневых атомов было введено в работе Дике [2]. С помощью этого представления для большого числа атомов было показано появление эффекта сверхизлучения. Статья Дике стала отправной точкой для многих последующих работ по изучению оптических свойств коллективных состояний многочастичных систем [4]. Усовершенствование техники эксперимента в области селективного удержания частиц в пространстве [77–79] сделало возможным экспериментальное исследование не только многочастичных систем, но и изучение поведения отдельных частиц. Это способствовало интенсивному теоретическому исследованию оптических свойств различных моделей взаимодействующих частиц во внешнем поле. Результаты в этой области можно проследить по работам [6,80]. Дальнейшая трансформация задачи о коллективных состояниях частиц была связана с развитием квантовых вычислений и новых способов хранения и обработки информации. Основной исследуемой системой для подобных задач является набор атомов или ионов, управляемых лазерным полем. Простым примером такой системы является модель двух близко расположенных двухуровневых атомов с диполь-дипольным взаимодействием в лазерном поле [84, 86]. Подробное исследование поведения этой модели и ее характеристик, а также экспериментальная верификация необходимы для правильного квантового описания более сложных многочастичных систем. Так, в настоящее время, на примере двух молекул в работах [7,8] продемонстрировано хорошее экспериментальное разрешение полной интенсивности флуоресценции такой

системы в зависимости от лазерной отстройки. Изучение парных систем излучателей является оформившимся научным направлением современной науки. Под такими парами понимают две близко расположенные в пространстве квантовые системы с относительно близкими по частоте электронными переходами. Диапазон расстояний между ними, с одной стороны, ограничивается длиной волны резонансного излучения, а, с другой стороны, должен быть достаточно большим, чтобы не произошло перекрытия электронных волновых функций. В данной конфигурации квантовые системы становятся связанными диполь-дипольным взаимодействием, индуцируемым внешними условиями, включая, в частности, поле лазерного возбуждения. Диполь-дипольное взаимодействие приводит к изменению характеристик излучения пары по сравнению с излучением независимых одиночных источников. Аналитическое решение такой задачи возможно лишь для отдельных специфических конфигураций. Численное решение позволяет решить задачу для любой конфигурации модельной системы, однако для реальных систем представляется невыполнимым узнать, какая из конфигураций будет представлять интерес как с точки зрения наблюдения фундаментальных закономерностей, так и возможных приложений. Поэтому требуется экспериментальная техника, позволяющая создание произвольных конфигураций диполь-дипольного взаимодействия внутри излучающей пары и техника регистрации всех характеристик излучения: спектрального состава, статистики фотонов, диаграммы направленности. Создание и отладка методики подобных измерений в совокупности с численным экспериментом позволит уточнить теоретическую модель взаимодействия в реальных системах.

В этой главе рассматривается простейшая коллективная система, состоящая из двух частиц, находящихся на расстоянии меньше длины волны излучения. Цепочка строится для системы, состоящей из двух квантовых излучателей и свободного квантованного электромагнитного поля. Излучатели имеют разные дипольные моменты и различные, но близкие частоты перехода. В поле присутствует отдельная мода, представляющая излучение внешнего лазера.

2.1 Модель и гамильтониан

Рассматривается система, состоящая из двух двухуровневых излучателей с частотами перехода ω_i и дипольными моментами \mathbf{d}_i , где $i \in \{1, 2\}$, так что $\omega_1 \neq \omega_2$, $|\mathbf{d}_1| \neq |\mathbf{d}_2|$ и $|\omega_1 - \omega_2| \ll \omega_1, \omega_2$. Таким образом, рассматриваются два неидентичных излучателя с различными частотами и моментами перехода, так что $\delta_\omega = \omega_1 - \omega_2$ – разница частот излучателей. В качестве условного допущения для непрерывного лазера он рассматривается как линейно поляризованная плоская волна с волновым вектором \mathbf{k}_L и амплитудой напряженности электрического поля \mathbf{E}_L . Атомы рассматриваются зафиксированными в определенных позициях, представленных радиус-вектором \mathbf{r}_{12} , который является параметром, меняющийся произвольно.

Фотолюминесценция пары атомов рассчитывается для произвольных направлений \mathbf{r}_D от центра системы. Рисунок 2.1 иллюстрирует постановку задачи и возможные направления взаимодействия и наблюдения. Излучатели расположены вдоль оси Z на равных расстояниях от начала координат. Пространственное расположение (относительная ориентация) для системы возбуждения \mathbf{k}_L и \mathbf{E}_L , и векторов \mathbf{r}_{12} и \mathbf{r}_D может быть полностью определено путем установки независимых значений для четырех углов ξ, θ, ϕ и ψ . Направление возбуждения и наведенных дипольных моментов определяется двумя полярными углами ξ и θ , которые соответствуют ориентациям \mathbf{k}_L и \mathbf{E}_L . Азимутальное положение \mathbf{d}_i (не отмечено на рисунке) — это функция $f(\xi, \theta)$, которая вычисляется с учетом того, что \mathbf{d}_i и \mathbf{E}_L коллинеарны, а \mathbf{k}_L лежит в плоскости ZY . Наклон \mathbf{d} зависит от ξ и находится в пределах $\left| \frac{\pi}{2} - \xi \right| \leq \theta \leq \pi - \left| \frac{\pi}{2} - \xi \right|$. Направление на наблюдателя \mathbf{r}_D может быть произвольным. Таким образом, можно вычислить угол $\beta(\xi, \theta, \phi, \psi)$ между векторами \mathbf{r}_D и \mathbf{d}_i , называемый параметром наблюдения.

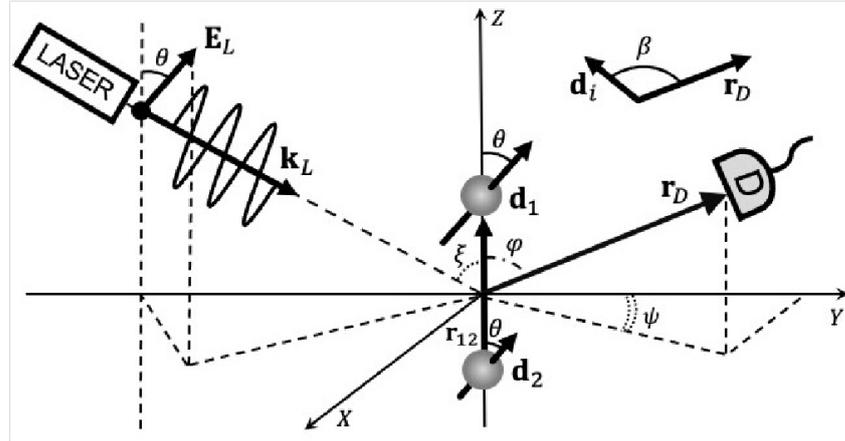


Рис. 2.1. Схема возбуждения/детектирования. Два излучателя находятся на расстоянии $r_{12} = |\mathbf{r}_{12}|$ друг от друга. Возбуждение описывается через векторы \mathbf{k}_L и \mathbf{E}_L ($\mathbf{k}_L \perp \mathbf{E}_L$). Направление распространения возбуждающего лазера и направление его поляризации можно менять, варьируя полярные углы ξ и θ . Направление дипольных моментов \mathbf{d}_i определяется полярным углом θ . Положение детектора определяется вектором \mathbf{r}_D , направление которого задается через полярный углом φ и азимутальный угол ψ . Угол между \mathbf{r}_D и \mathbf{d}_i есть β .

Гамильтониан рассматриваемой системы имеет вид:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}, \quad (2.1)$$

где \hat{H}_0 есть гамильтониан невозмущенной системы

$$\hat{H}_0 = \sum_i \hat{H}_i + \sum_f \hat{H}_f = \sum_i \hbar\omega_i \hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_i^- + \sum_f \hbar\omega_f \hat{a}_f^+ \hat{a}_f. \quad (2.2)$$

Первое слагаемое представляет собой энергии свободных материальных частиц с повышающими $\hat{\sigma}_i^+ = |e_i\rangle\langle g_i|$ и понижающими $\hat{\sigma}_i^- = |g_i\rangle\langle e_i|$ операторами, где $|e_i\rangle$ и $\langle g_i|$ - собственные вектора основного и возбужденного уровней. Последнее слагаемое представляет собой энергию свободного квантованного электромагнитного поля, \hat{a}_f^+ и \hat{a}_f - операторы рождения и уничтожения фотона с частотой ω_f . Индекс $f = \{\mathbf{k}_f, \alpha\}$, определяет частоту, направление (\mathbf{k}_f - волновой вектор, $|\mathbf{k}_f| = \omega_f/c$) и поляризацию фотона ($\alpha \in \{1,2\}$).

Оператор \hat{V} описывает взаимодействие каждого излучателя с модами электромагнитного поля

$$\hat{V} = \sum_{i,f} \hat{V}_{if}. \quad (2.3)$$

Как было указано ранее, взаимодействие излучателей с полем рассматривается в рамках электрического дипольного приближения

$$\hat{V}_{if} = -\hat{\mathbf{d}}_i \cdot \hat{\mathbf{E}}_f, \quad (2.4)$$

где $\hat{\mathbf{d}}_i$ – оператор дипольного момента частицы i в представлении взаимодействия:

$$\hat{\mathbf{d}}_i = \hat{\sigma}_i^- \mathbf{d}_i e^{-i\omega_i t} + \hat{\sigma}_i^+ \mathbf{d}_i^* e^{i\omega_i t}, \quad (2.5)$$

\mathbf{d}_i – матричный элемент дипольного момента перехода, а $\hat{\mathbf{E}}_f$ – оператор моды электрического поля, который в представлении взаимодействия имеет вид

$$\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}) = i\lambda_f \mathbf{e}_f (\hat{a}_f e^{-i\omega_f t + i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}} - \hat{a}_f^\dagger e^{i\omega_f t - i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}}), \quad (2.6)$$

где \mathbf{e}_f – единичный вектор поляризации фотона, $\lambda_f = \sqrt{2\pi\hbar\omega_f/V}$ – константа связи в объеме квантования V .

2.2 Кооперативное управляющее уравнение

Динамика и свойства системы, представленной гамильтонианом (2.1), определяются из общей (многочастичной) матрицы плотности $\rho(t)$, которая удовлетворяет уравнению (1.1). Поскольку два излучателя представляют собой единую систему, взаимодействующую с внешним полем, будем искать двухчастичную атомную матрицу плотности $\rho_{\{a\}}$, где $\{a\} \in \{1,2\}$, взяв след от уравнения (1.1) по всем фотонным модам. Тогда замкнутая система уравнений, необходимых для вычисления управляющего уравнение будет иметь вид:

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho_{\{a\}} - \sum_f \left[\sum_i \langle \hat{V}_{if} \rangle_f, \rho_{\{a\}} \right] = \sum_f Tr_f \left[\sum_i \hat{V}_{if}, g_{\{a\}f} \right], \quad (2.7)$$

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho_f - \left[\sum_i \langle \hat{V}_{if} \rangle_i, \rho_f \right] = Tr_{\{a\}} \left[\sum_i \hat{V}_{if}, g_{\{a\}f} \right], \quad (2.8)$$

$$i\hbar \frac{d}{dt} g_{\{a\}f} - \left[\sum_i \bar{V}_{if}, \rho_{\{a\}} \rho_f \right] = \sum_{f' \neq f} Tr_{f'} \left[\sum_i \hat{V}_{if}, \rho_{\{a\}} g_{ff'} \right], \quad (2.9)$$

$$\begin{aligned}
i\hbar \frac{d}{dt} g_{ff'} - \left[\sum_i \langle \hat{V}_{if} + \hat{V}_{if'} \rangle_i, g_{ff'} \right] \\
= Tr_{\{a\}} \left[\sum_i \hat{V}_{if}, \rho_f g_{\{a\}f'} \right] + Tr_{\{a\}} \left[\sum_i \hat{V}_{if'}, \rho_{f'} g_{\{a\}f} \right]. \quad (2.10)
\end{aligned}$$

Тогда уравнение (2.7) с использованием определением полевых величин (1.12) и (1.13) может быть записано в виде:

$$\frac{d}{dt} \rho_{\{a\}} = \frac{i}{\hbar} \sum_i [\hat{\mathbf{d}}_i(t) \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{r}_i, t), \rho_{\{a\}}(t)] + \frac{i}{\hbar} \sum_i [\hat{\mathbf{d}}_i(t) \cdot \hat{\boldsymbol{\Phi}}(\mathbf{r}_i, t)], \quad (2.11)$$

где полевые величины, входящие в уравнение, представляются через функции Грина (см. Приложение Б):

$$\boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{r}, t) = \boldsymbol{\varepsilon}_0(\mathbf{r}, t) + \int_0^t dt' \sum_i \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - t') \mathbf{p}_i(t'). \quad (2.12)$$

и аналогично (см. Приложение В):

$$\begin{aligned}
\hat{\boldsymbol{\Phi}}(\mathbf{r}, t) = \sum_i \int_0^t dt' \{ \vec{\mathbf{G}}^+(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - t') \bar{\mathbf{d}}_i(t') \rho_{\{a\}}(t') \\
+ \vec{\mathbf{G}}^-(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - t') \rho_{\{a\}}(t') \bar{\mathbf{d}}_i(t') \} \\
+ \frac{i}{\hbar} \sum_i \int_0^t dt' \vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_i, t, t') [\hat{\mathbf{d}}_i(t'), \rho_{\{a\}}(t')], \quad (2.13) \\
\bar{\mathbf{d}}_i = \hat{\mathbf{d}}_i - \mathbf{p}_i.
\end{aligned}$$

Уравнение (2.11) с использованием марковского приближения преобразуется к виду:

$$\begin{aligned}
\frac{d}{dt} \rho_{\{a\}} = \frac{i}{\hbar} \sum_i [\hat{\mathbf{d}}_i(t) \boldsymbol{\varepsilon}_0(\mathbf{r}_i, t), \rho_{\{a\}}] \\
+ \frac{i}{\hbar} \sum_{i,j} \left[\hat{\mathbf{d}}_i(t), \int_0^t dt' \{ \vec{\mathbf{G}}^+(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j, t - t') \hat{\mathbf{d}}_j(t') \rho_{\{a\}} + \vec{\mathbf{G}}^-(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j, t - t') \rho_{\{a\}} \hat{\mathbf{d}}_j(t') \} \right] \\
- \frac{1}{\hbar^2} \sum_{i,j} \left[\hat{\mathbf{d}}_i(t), \int_0^t dt' \vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, t, t') [\hat{\mathbf{d}}_j(t'), \rho_{\{a\}}] \right]. \quad (2.14)
\end{aligned}$$

Первая группа коммутаторов в правой части содержит поле \mathcal{E}_0 из уравнения (2.12), которое в частном случае представляет падающее лазерное излучение. Отметим, что интеграл по времени в (2.12) сокращается с членами из (2.13) при марковском приближении, что означает естественное исключение самовоздействия излучателей.

Вторая сумма собирает коммутаторы, ответственные за различные некогерентные взаимодействия (энергообмен) между излучателями и полем. Благодаря свойствам тензора Грина эти члены могут быть разделены на его действительную и мнимую части. Кроме того, каждая часть будет иметь составляющие, в которых тензор Грина берется на полюсах (когда $i = j$), и в которых он вычисляется для расстояний между излучателями ($i \neq j$). Таким образом, можно ожидать, что это слагаемое будет описывать радиационный распад и сдвиги частот перехода.

Последняя группа слагаемых содержит тензор корреляции поля (1.18). Операторная часть предполагает, что они будут производить множественные перекрестные вклады в кинетику населенностей и когерентностей в излучающей паре. Эти вклады характеризуются скоростями, определяемыми плотностью потока некогерентных фотонов, и включают в себя многократное рассеяние света и обмен возбуждением между излучателями.

В качестве возбуждающего поля рассматривается плоская монохроматическая волна $\mathcal{E}_0(\mathbf{r}, t) = \text{Re}(\mathcal{E}e^{i\omega_L t - i\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}})$ с комплексной амплитудой \mathcal{E} , частотой ω_L и волновым вектором \mathbf{k}_L .

Для расчета скорости коллективной релаксации и параметра диполь-дипольного взаимодействия воспользуемся явным видом тензора Грина распространения электромагнитного поля:

$$\vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_{ij}, \omega) = k^2 \frac{e^{ikr_{ij}}}{r_{ij}} (P(ikr_{ij})\vec{\mathbf{I}} + Q(ikr_{ij}) \mathbf{n}_{ij} \otimes \mathbf{n}_{ij}), \quad (2.15)$$

$$\mathbf{r}_{ij} = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j, r_{ij} = |\mathbf{r}_{ij}|, \quad k = \frac{\omega}{c}, \quad \mathbf{n}_{ij} \otimes \mathbf{n}_{ij} = \frac{\mathbf{r}_{ij} \times \mathbf{r}_{ij}}{r_{ij}^2},$$

$$P(z) = 1 - \frac{1}{z} + \frac{1}{z^2}, \quad Q(z) = -1 + \frac{3}{z} - \frac{3}{z^2}.$$

Таким образом, скорость коллективной релаксации и параметр диполь-дипольного взаимодействия принимают известный вид [32,81] (см. Приложение А):

$$\begin{aligned} \gamma_{12} = \frac{3\sqrt{\gamma_1\gamma_2}}{2k_0r_{12}} \left\{ \cos k_0r_{12} \left[\frac{1}{k_0r_{12}} - \frac{3\cos^2\theta}{k_0r_{12}} \right] \right. \\ \left. + \sin k_0r_{12} \left[1 - \cos^2\theta + \frac{3\cos^2\theta - 1}{k_0^2r_{12}^2} \right] \right\}, \end{aligned} \quad (2.16)$$

$$\begin{aligned} \Omega_{12} = \frac{3\sqrt{\gamma_1\gamma_2}}{2k_0r_{12}} \left\{ \sin k_0r_{12} \left[\frac{3\cos^2\theta}{k_0r_{12}} - \frac{1}{k_0r_{12}} \right] \right. \\ \left. + \cos k_0r_{12} \left[1 - \cos^2\theta + \frac{3\cos^2\theta - 1}{k_0^2r_{12}^2} \right] \right\}. \end{aligned} \quad (2.17)$$

Здесь θ - угол между направлением дипольных моментов \mathbf{d}_i и вектором, соединяющим два излучателя \mathbf{r}_{12} , а $k_0 = (k_1 + k_2)/2$. Из свойств тензора Грина следует, что $\Omega_{12} = \Omega_{21}$, $\gamma_{12} = \gamma_{21}$. Так как излучатели находятся на расстоянии меньшем длины волны внешнего излучения, можно положить, что их дипольные моменты параллельны.

Коллективные скорости релаксации и параметр диполь-дипольного взаимодействия описывают коллективное затухание и коллективный сдвиг энергетических уровней и определяют коллективные свойства двухатомной системы. Взаимодействие сильно зависит от межатомного расстояния \mathbf{r}_{12} и пространственной ориентации дипольных моментов. На Рис. 2.2 показана зависимость коллективных параметров γ_{12} и Ω_{12} (здесь и далее все параметры масштабируются на γ_1 и для простоты принимаем $\gamma_1 = 1$) от угла θ , отражающего поляризацию падающего поля.

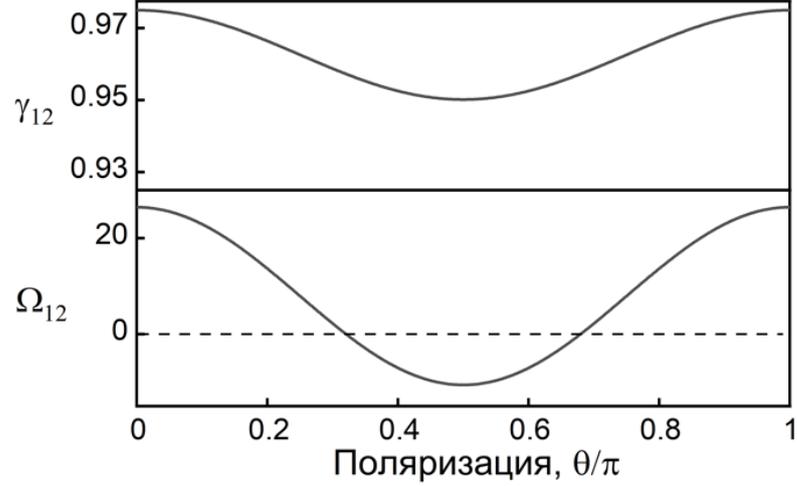


Рис. 2.2. Кооперативная скорость релаксации (верхний график) и параметр диполь-дипольного взаимодействия (нижний график) как функции угла θ при фиксированном расстоянии между излучателями $r_{12} = 0.08\lambda$ ($\lambda = \lambda_1$).

Вычисляя интегралы в (2.14), используя приближение вращающейся волны и переходя к системе координат, вращающейся с лазерной частотой ω_L , получим управляющее уравнение для материальной части рассматриваемой системы в виде:

$$\begin{aligned}
\frac{d}{dt}\rho_{\{a\}} = & -i \sum_i \Delta_i [\hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^-, \rho_{\{a\}}] + i \sum_i [\Omega_i(\mathbf{r}_i) \hat{\sigma}_i^- + \Omega_i^*(\mathbf{r}_i) \hat{\sigma}_i^+, \rho_{\{a\}}] \\
& + i \sum_{i \neq j} \Omega_{ij} [\hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^-, \rho_{\{a\}}] \\
& - \sum_{i,j} \gamma_{ij} ([\hat{\sigma}_i^+, \hat{\sigma}_j^- \rho_{\{a\}}] + [\rho_{\{a\}} \hat{\sigma}_i^+, \hat{\sigma}_j^-]) \\
& - \frac{1}{\hbar^2} \sum_{i,j} \left([\hat{\sigma}_i^+, [\hat{\sigma}_j^-, \rho_{\{a\}}]] \int_0^t dt' \mathbf{d}_i \overleftrightarrow{\mathbf{W}}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, t, t') \mathbf{d}_j e^{i\omega_j(t-t')} \right. \\
& \left. + [\hat{\sigma}_i^-, [\hat{\sigma}_j^+, \rho_{\{a\}}]] \int_0^t dt' \mathbf{d}_i \overleftrightarrow{\mathbf{W}}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, t, t') \mathbf{d}_j e^{-i\omega_j(t-t')} \right).
\end{aligned} \tag{2.19}$$

Здесь $\Omega_i(\mathbf{r}) = \Omega_i e^{-i\mathbf{k}_L \cdot \mathbf{r}}$, $\Omega_i = \mathbf{d}_i \cdot \mathbf{E} \sqrt{2\hbar}$ - частота Раби. Из операторной части в последней сумме этого уравнения следует, что это слагаемое отвечает за различные каналы обмена между населенностями и когерентности, вызванные

многократным рассеянием фотонов. В этой работе формулируются условия, при которых можно не учитывать многократное рассеяние.

Таким образом, получено управляющее уравнение, которое описывает эволюцию двух неидентичных двухуровневых излучателей, под воздействием падающего поля. Это управляющее уравнение является универсальным с точки зрения геометрии падающей плоской волны и положения излучателей. Для больших межатомных расстояний, т.е., для $kr_{12} \gg 1$ и $\gamma_{12} = \Omega_{12} = 0$ в соответствии с их зависимостью от \mathbf{r}_{12} , кооперативная связь очень слабая и уравнение сводится к основным уравнениям Линдблада для отдельных атомов [36]. Следует обратить внимание, что основное уравнение для кооперативной системы найдено с учетом того, что в исходном гамильтониане присутствовало только взаимодействие частиц с полем. Диполь-дипольное взаимодействие и коллективная релаксация были получены естественно в ходе решения системы ББГКИ из взаимодействия между излучателями и квантованным полем.

2.3 Полная интенсивность фотолюминесценции

Интенсивность излучения традиционно рассчитывается исходя из следующих соображений: она определяется из корреляционной функции первого порядка электромагнитного поля в точке \mathbf{r} в дальней зоне излучения, испускаемого источником [36]. В предыдущем разделе было показано, что ББГКИ порождает тензор корреляции полей $\overleftrightarrow{\mathbf{W}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t')$. Будучи естественной внутренней частью системы, он может иметь разные физические интерпретации наряду с разными значениями своих аргументов. Если взять одну точку (\mathbf{r}, t) , где \mathbf{r} - положение наблюдателя, а t - время регистрации, тензор будет определять количество сигнала фотолюминесценции, захваченного детектором. Таким образом, тензор корреляции электромагнитного поля, определенный в (1.18), взятый в точке (\mathbf{r}, t) , позволяет вычислить полную интенсивность излучения. Используя уравнение (1.18) и определение вектора Пойтинга, можно получить, что полная интенсивность излучения пропорциональна следующей величине:

$$S(\mathbf{r}, t) \sim \left(\frac{c}{4\pi}\right) \sum_{k=1}^2 \tilde{\mathbf{e}}_k \vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}, t, t) \tilde{\mathbf{e}}_k,$$

где вектора $\tilde{\mathbf{e}}_1$ и $\tilde{\mathbf{e}}_2$ перпендикулярны друг другу и вектору, направленному на наблюдателя \mathbf{r} .

Уравнение (1.18) можно преобразовать, используя формальные решения для ρ_f и $g_{ff'}$. Суммируя по модам, получаем значение тензора (см. Приложение Г):

$$\begin{aligned} \vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t') &= \int_0^{t'} d\tau \text{Tr}_{\{a\}} \left\{ \sum_i \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau) \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \otimes \hat{\Phi}_{\mathcal{L}}(\mathbf{r}', t') \right. \\ &\quad \left. + \hat{\Phi}_{\mathcal{L}}(\mathbf{r}, t) \otimes \sum_i \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r}' - \mathbf{r}_i, t' - \tau) \right\}. \end{aligned} \quad (2.20)$$

Будем использовать только ту часть $\hat{\Phi}$, которая не содержит сам тензор $\vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t')$ и обозначим ее $\hat{\Phi}_{\mathcal{L}}(\mathbf{r}, t)$:

$$\hat{\Phi}_{\mathcal{L}}(\mathbf{r}, t) = \sum_j \int_0^t dt' \{ \vec{\mathbf{G}}^+(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, t - t') \hat{\mathbf{d}}_j(t') \rho_{\{a\}} + \vec{\mathbf{G}}^-(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, t - t') \rho_{\{a\}} \hat{\mathbf{d}}_j(t') \}.$$

Подставляя решение $\hat{\Phi}_{\mathcal{L}}(\mathbf{r}, t)$ и переходя применяя ($\mathbf{r}' \rightarrow \mathbf{r}, t' \rightarrow t \rightarrow \infty$) в уравнении (2.20), после использования приближения вращающейся волны получим полную интенсивность излучения в точке \mathbf{r} :

$$I(\mathbf{r}) = S(\mathbf{r}, t \rightarrow \infty) = \sum_{i,j} \langle \hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^- \rangle_{st} \sum_{k=1}^2 \tilde{\mathbf{e}}_k \vec{\mathbf{I}}_{ij} \tilde{\mathbf{e}}_k,$$

В данное выражение входят тензорные компоненты $\vec{\mathbf{I}}_{ij}$ с множителями, которые являются соответствующими элементами атомной матрицы плотности $\langle \hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^- \rangle_{st} = \text{Tr}_{\{a\}} \{ \hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^- \rho_{\{a\}} \}$, найденными из стационарного уравнения. Компоненты тензора теперь можно записать в форме, в которой соответствующие временные интегрирования были выполнены с использованием тех же шагов, что и в предыдущем разделе

$$\vec{\Gamma}_{ij} = \frac{c}{\pi} \mathbf{d}_i^* \vec{\mathbf{G}}^*(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, \omega_i) \otimes \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, \omega_j) \mathbf{d}_j. \quad (2.21)$$

Здесь пространственные аргументы описывают расстояния от каждого излучателя до наблюдателя. Для дальнейших вычислений полезно модифицировать тензор Грина следующим образом:

$$\vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, \omega_i) = \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \omega_i) e^{-ik_i r_{ij} (\mathbf{n} \cdot \mathbf{n}_{ij})/2},$$

где $r_{ij} = |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j| = r_{ji}$, $\mathbf{n}_{ij} = \mathbf{r}_{ij}/r_{ij} = -\mathbf{n}_{ji}$, $k_i = \omega_i/c$. Можно предположить, что дипольные моменты коллинеарны и представляют вектор дипольного момента в виде $\mathbf{d}_i = d_i \mathbf{n}_d$. Таким образом, получаем (см. Приложение Д):

$$I(\mathbf{r}, t) = \sum_{i,j} \langle \hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^- \rangle_{st} e^{i\phi_{ij} + i(k_i - k_j)r} \sum_{k=1}^2 \tilde{\mathbf{e}}_k \vec{\mathbf{J}}_{ij} \tilde{\mathbf{e}}_k, \quad (2.22)$$

где $\phi_{ij} = r_{ij} k_0 (\mathbf{n} \cdot \mathbf{n}_{ij}) = r_{ij} k_0 \cos \varphi$ - параметр наблюдателя, связанный с углом φ между векторами \mathbf{n}_{ij} и $\mathbf{n} = \mathbf{r}/r$, и

$$\vec{\mathbf{J}}_{ij} = \frac{\omega_i^2 \omega_j^2 d_i d_j}{\pi r^2 c^3} ((\mathbf{n}_d \otimes \mathbf{n}_d) - (\mathbf{n}_d \otimes \mathbf{n} + \mathbf{n} \otimes \mathbf{n}_d)(\mathbf{n}_d \cdot \mathbf{n}) + (\mathbf{n} \otimes \mathbf{n})(\mathbf{n}_d \cdot \mathbf{n})^2).$$

После суммирования по векторам $\tilde{\mathbf{e}}_k$ можно найти выражение для геометрического фактора в явном виде:

$$I(\mathbf{r}, t) = \sum_{i,j} \langle \hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^- \rangle_{st} I_{ij}, \quad I_{ij} = \sin^2 \beta \frac{\omega_i^2 \omega_j^2 d_i d_j}{\pi r^2 c^3} e^{i\phi_{ij} + i(k_i - k_j)r}, \quad (2.23)$$

где введен β - угол между направлением наблюдения \mathbf{r} и направлением дипольных моментов \mathbf{d}_i .

Для окончательной оценки общей интенсивности нам нужны решения для элементов матрицы плотности. Уравнения для них следуют из основного уравнения (2.19). Основное уравнение дает 15 кинетических уравнений, описывающих эволюцию атомных переменных (компонентов матрицы плотности). Желательно переписать элементы матрицы плотности атомов, используя представление коллективных состояний [1]:

$$|G\rangle = |g_1 g_2\rangle, \quad |S\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|e_1 g_2\rangle + |g_1 e_2\rangle),$$

$$|U\rangle = |e_1 e_2\rangle, \quad |A\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|e_1 g_2\rangle - |g_1 e_2\rangle). \quad (2.24)$$

В базисе коллективных состояний двухатомная система ведет себя как единая четырехуровневая система с основным состоянием $|G\rangle$ верхним состоянием $|U\rangle$ и двумя промежуточными состояниями: симметричным состоянием $|S\rangle$ и антисимметричным состоянием $|A\rangle$. Энергии промежуточных состояний зависят от величины диполь-дипольного взаимодействия Ω_{12} .

Таким образом, полная интенсивность излучения двухчастичной кооперативной системы записывается как

$$I(\mathbf{r}) = \frac{I_{11} + I_{22}}{2} (2\rho_{UU} + \rho_{SS} + \rho_{AA}) - 2I_{12} \sin \alpha \operatorname{Im} \rho_{SA} + I_{21} \cos \alpha (\rho_{SS} - \rho_{AA}) + (I_{11} - I_{22}) \operatorname{Re} \rho_{SA}, \quad (2.25)$$

где $\alpha = ir_{ij}k_0 \cos \varphi + i(k_1 - k_2)r$.

Для исследования спектров возбуждения фотолюминесценции, необходимо представить полную интенсивность стационарного излучения как функцию отстройки $\Delta = \omega_0 - \omega_L$, где $\omega_0 = (\omega_1 + \omega_2)/2$. На Рис. 2.3 представлен типичный профиль зависимости полной интенсивности излучения от лазерной отстройки. Три пика демонстрируют хорошо известную конфигурацию кооперативных резонансов, экспериментально зарегистрированную в работах [7,8].

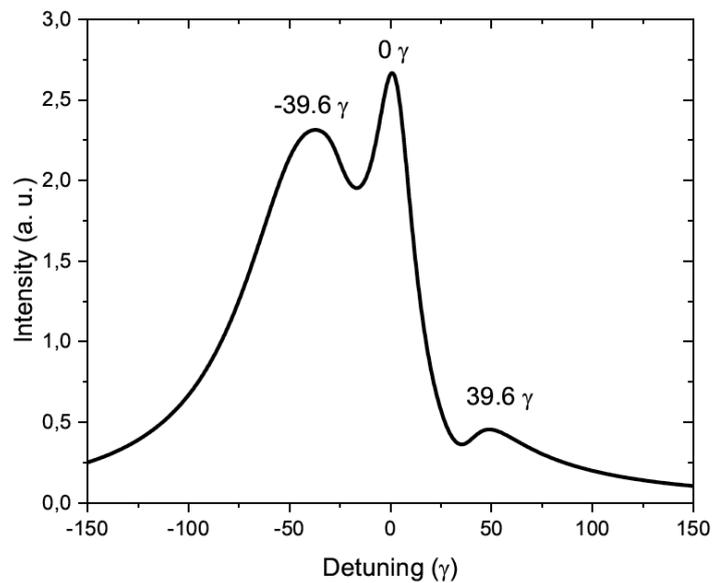


Рис. 2.3. Спектр возбуждения фотолюминесценции двух излучателей с $\delta_\omega = 10\gamma$, $d_1 = 1.5d_2$, $r_{12} = 0.06\lambda$, $\xi = \pi/2$, $\phi = \pi/2$, $\theta = \pi/2$, $\Omega_1 = 15\gamma$, $\Omega_2 = 22.5\gamma$.

В работе [7] были измерены спектры возбуждения от двух молекул террилена, заключенных в кристалл пара-терфенила, а условия эксперимента были таковы, что модель двухуровневого атома является хорошим приближением с точки зрения диполь-дипольного взаимодействия. Было показано, что центральный пик соответствует одновременному поглощению двух фотонов и последующему излучению пары коррелированных фотонов. Об этом свидетельствует группировка фотонов в автокорреляционной функции, которая также была измерена в эксперименте. Боковые пики соответствуют коллективным состояниям. Похожие зависимости в спектрах возбуждения фотолюминесценции были описаны в работе [82] как результат оригинального эксперимента [83]. На Рис. 2.4 изображены характерные кооперативные триплеты спектров возбуждения фотолюминесценции. Контуры возбуждения показывают одинаковые расстояния между спектральными пиками, отличающимися по высоте и ширине, что соответствует картине проявления диполь-дипольного взаимодействия в паре молекул.

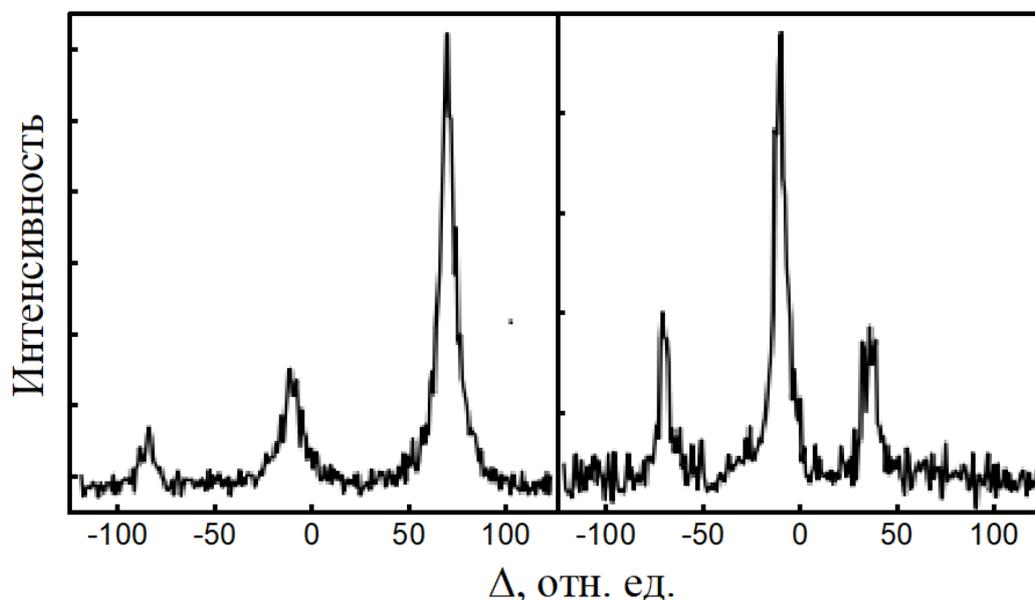


Рис. 2.4. Спектры возбуждения фотолюминесценции молекул террилена в тонкой пленке 1, 2-орто-дихлоробензола [82,83].

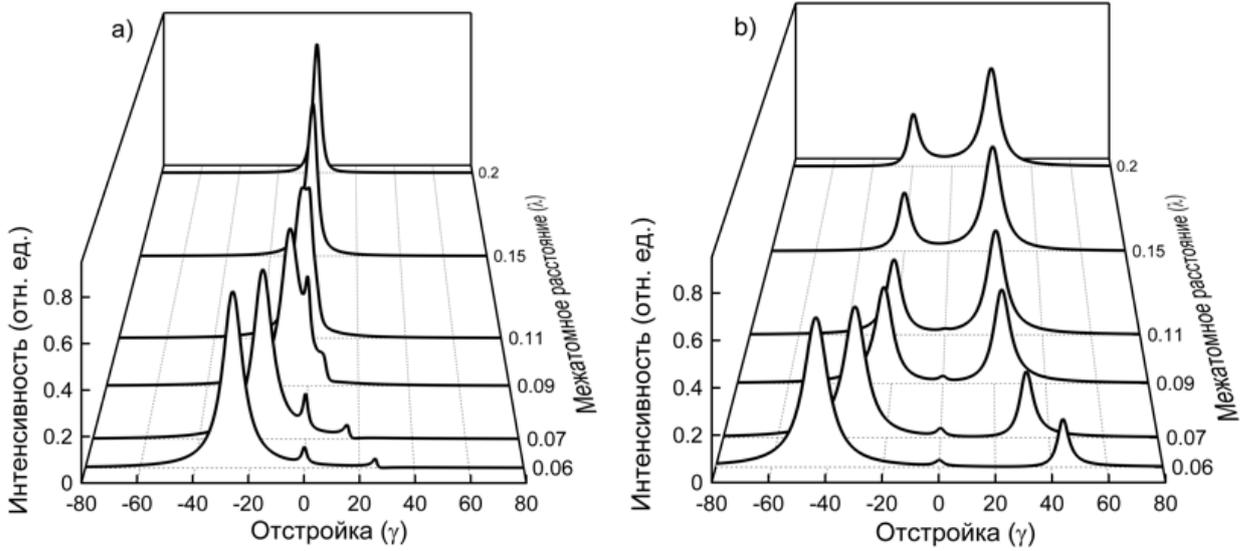


Рис. 2.5. Спектры возбуждения фотолюминесценции двух идентичных излучателей (a) при $\Delta\omega = 0, d_1 = d_2$, и неидентичных излучателей (b) $\Delta\omega = 20, d_2 = 1.5d_1$, для различных межатомных расстояний. Другие параметры: $\Omega_1 = 2, \Omega_2 = \Omega_1 d_2/d_1, \xi = \pi, \theta = \pi/2, \varphi = 0$.

Поскольку запутанность обусловлена диполь-дипольным взаимодействием и коллективным распадом, особый интерес представляет преобразование спектра возбуждения с изменением расстояния между излучателями. На Рис. 2.5(a)-(b) показаны спектры возбуждения в зависимости от расстояния между частицами (в единицах резонансной длины волны одного из излучателей $\lambda_1 = \lambda$). Дальние профили на Рис. 2.5(a)-(b) демонстрируют слабое взаимодействие, когда расстояние достаточно велико, чтобы частицы могли эволюционировать независимо. Для идентичных атомов на Рис. 2.5(a) существует единый пик, соответствующий резонансной частоте обеих частиц. Для неидентичных атомов на Рис. 2.5(b) существуют два различных пика на частотах, соответствующих каждому резонансу. При меньших расстояниях профили спектров становятся заметно разными (передние профили на Рис. 2.5). Сближение атомов разбивает картину на три кооперативных пика.

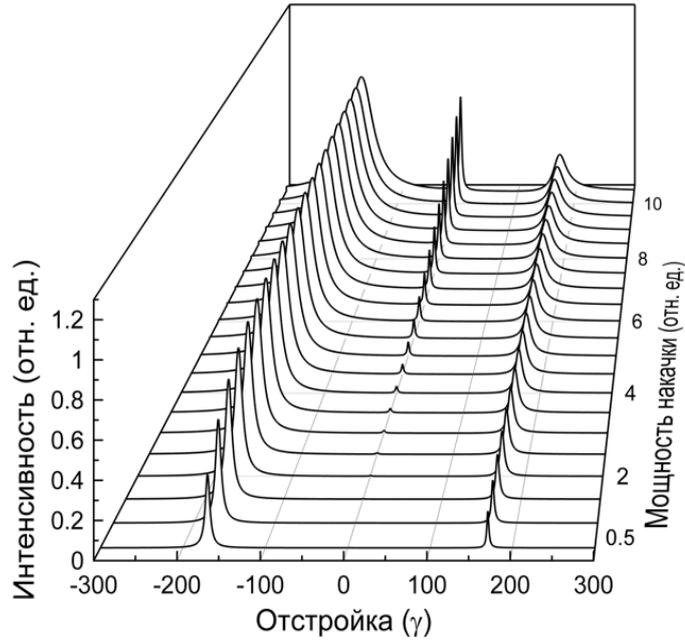


Рис. 2.6. Спектр возбуждения фотолюминесценции пары излучателей для различных мощностей возбуждения при $\Delta_\omega = 100$, $d_2 = 1.5d_1$, $\xi = \pi/2$, $\varphi = \pi/2$, $r_{12} = 0.04\lambda$. Симуляция зависимости, наблюдаемой в работе [7]

На Рис. 2.6 показано, как меняются спектры при разной интенсивности возбуждения. Видно, что центральный пик, соответствующий двухфотонному процессу, возникает при определенной падающей мощности и увеличивается с увеличением интенсивности. Такое поведение хорошо согласуется с работой [7].

Теперь рассмотрим случай, когда возбуждение перпендикулярно межатомной оси, т.е., $\mathbf{k}_L \perp \mathbf{r}_{12}$. Это интересно с точки зрения сравнения с известными в литературе результатами для двух одинаковых излучателей. Эта ситуация ($\omega_1 = \omega_2$, $\mathbf{d}_1 = \mathbf{d}_2$) демонстрирует интенсивность фотолюминесценции только с двумя отдельными пиками при $\Delta = 0$ и $\Delta = -\Omega_{12}$ (сплошная линия на Рис. 2.7). Это означает, что при такой геометрии не виден пик, соответствующий антисимметричному состоянию. В то же время для разных атомов в спектрах наблюдаются три пика при $\Delta = 0$ и $\Delta \approx \pm\sqrt{\Omega_{12}^2 + \delta_\omega}$ (штриховые и штрихпунктирные линии на Рис. 2.7).

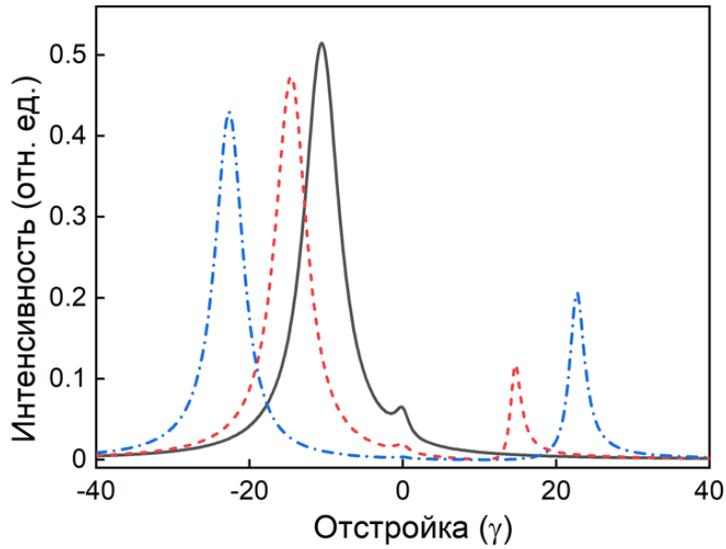


Рис. 2.7. Спектры возбуждения фотолюминесценции двух идентичных атомов (сплошная линия) при $\Delta_\omega = 10, d_1 = d_2$, и неидентичных атомов при $\Delta_\omega = 10, d_1 \neq d_2$ (пунктирная линия) и при $\Delta_\omega = 20, d_1 = d_2$ (штрихпунктирная линия). Другие параметры: $\Omega_1 = \Omega_2 = 2, \xi = \pi, \theta = \pi/2, \varphi = \pi/2, r_{12} = 0.08\lambda$.

Различия между излучателями также могут быть продемонстрированы на другом варианте геометрии. Ключевой особенностью является наблюдение фотолюминесценции под разными углами (Рис.2.8). При $\mathbf{r} \perp \mathbf{r}_{12}$ ($\phi = \pi/2$) интенсивность флуоресценции для идентичных излучателей показывает два пика с центрами при $\Delta = 0$ и $\Delta = -\Omega_{12}$ и провал при $\Delta = \Omega_{12}$ (сплошная линия на Рис. 2.8). При $\phi < \pi/2$ этот провал переходит в пик (пунктирная линия на Рис. 2.8). Иначе обстоит дело, когда атомы не идентичны. Интенсивность флуоресценции демонстрирует три пика для всех параметров наблюдения с небольшими изменениями высоты пика (вставка на Рис. 2.8). Из этого следует, что два разных излучателя могут оказаться запутанными таким образом, чтобы обеспечить лучшие условия для эффективной реализации субизлучательного состояния. Таким образом, учет разности излучателей позволяет ожидать большее спектральное разрешение от других кооперативных пиков и заметно более высокую интенсивность по сравнению со случаем идентичных излучателей.

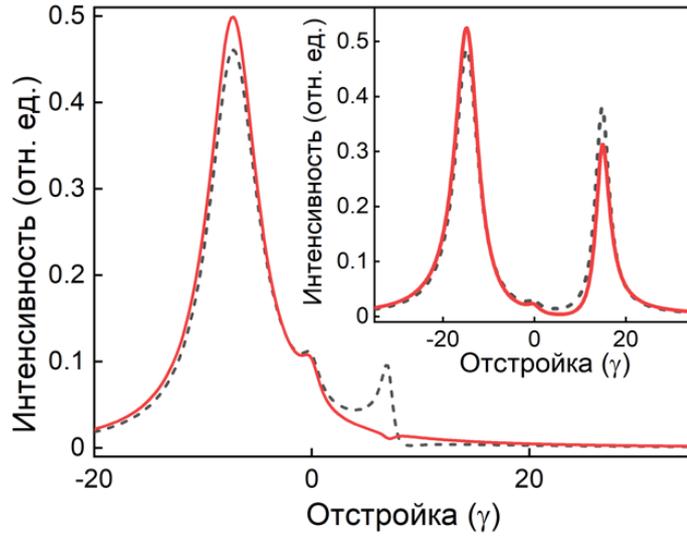


Рис. 2.8. Спектры возбуждения фотолюминесценции пары идентичных атомов для различных направлений наблюдения: $\varphi = \pi/2$ (сплошная линия), $\varphi = 0$ (пунктирная линия). На вставке представлен такой же спектр возбуждения фотолюминесценции с учетом того, что атомы неидентичные $\Delta\omega = 10, d_1 = d_2$. Другие параметры: $\Omega_1 = \Omega_2 = 2, \xi = \pi, \theta = \pi/2, r_{12} = 0.09\lambda$.

Рассмотрим другие частные случаи направления и поляризации внешнего поля. Параметр диполь-дипольного взаимодействия сильно зависит от угла θ как уже было показано на Рис. 2.2. Следовательно, стоит ожидать, что форма спектров возбуждения фотолюминесценции будет сильно зависеть от поляризации падающего поля, то есть от угла θ (см. Рис. 2.1). Фактическое соотношение между конфигурацией поляризацией лазера и углом θ можно рассчитать для конкретной экспериментальной установки. Для иллюстрации эффекта достаточно направить возбуждающий лазер так, чтобы угол θ и угол вращения \mathbf{E}_L вокруг вектора \mathbf{k}_L совпадали. На Рис. 2.9 показана трансформация спектра возбуждения фотолюминесценции пары излучателей, находящихся на фиксированном расстоянии, при вращении поляризации возбуждающего лазера.

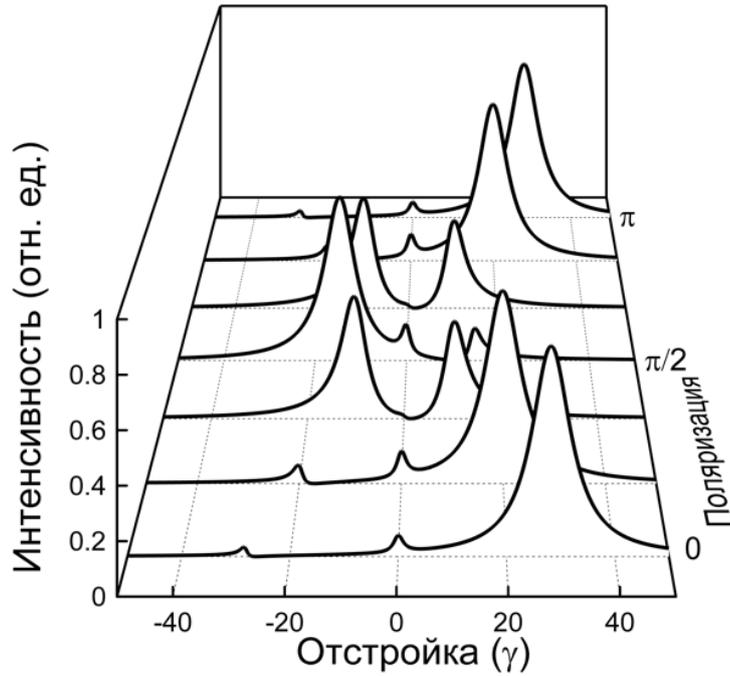


Рис. 2.9. Миграция спектра возбуждения фотолуминесценции при вращении поляризации внешнего поля при параметрах $\Delta\omega = 10$, $d_1 = d_2$, $\Omega_1 = \Omega_2 = 2$, $\xi = \pi/2$, $\varphi = \pi/2$, $r_{12} = 0.08\lambda$. Симуляция наблюдаемого в работе [8] эффекта.

Из Рис. 2.9 видно, что спектральное расстояние между пиками уменьшается при растущем значении угла θ до момента превращения спектра в двухпиковый. Это происходит при определенном значении угла θ , когда $\Omega_{12} = 0$ и расстояние между пиками определяется разницей в частотах перехода излучателей. При дальнейшем увеличении угла θ спектр возбуждения опять превращается в кооперативный триплет, при этом симметричный и антисимметричный пики меняют свои положения относительно начала отчета. После поворота θ на $\pi/4$ контур спектра возбуждения начинает раскручиваться обратно к изначальной картине. Очевидно, что при повороте угла θ на $\pi/2$ положения пиков возвращаются к своим изначальным значениям. На Рис. 2.10 показана траектория миграции соответствующего максимума. Для идентичных излучателей эта миграция оставляет неразрывный след. Напротив, излучатели с разными частотами переходов образуют прерывистые линии на Рис. 2.10, где разрывы определяются величиной $\delta\omega$.

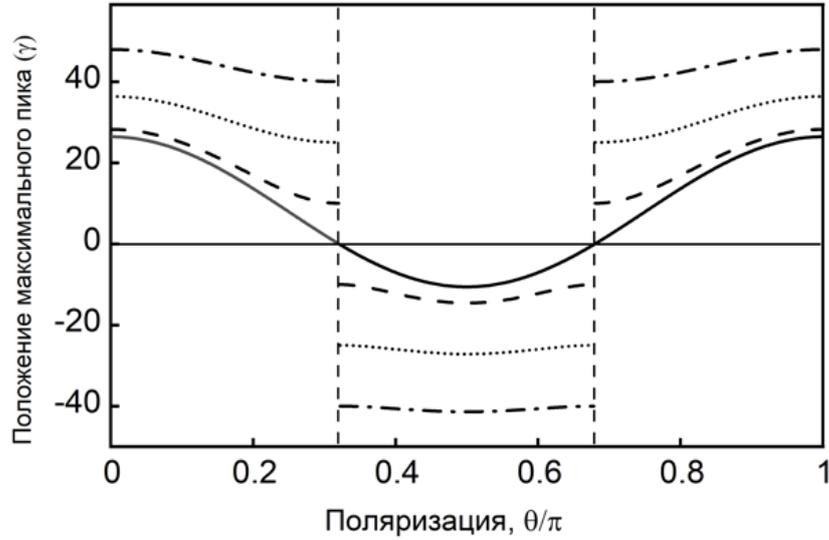


Рис. 2.10. Положение максимального флуоресцентного пика относительно центрального пика как функция угла поляризации (θ) при фиксированном расстоянии между излучателями $r_{12} = 0.08\lambda$. Представлены случаи с разными отстройками по частотам между излучателями: $\Delta\omega = 0$ (сплошная линия), $\Delta\omega = 10$ (пунктирная линия), $\Delta\omega = 25$ (мелко пунктирная линия), $\Delta\omega = 40$ (штрихпунктирная линия).

Эти свойства предполагают, что измерение амплитуды спектральной миграции (спектрального расстояния) и длины спектральных скачков (величины спектрального разрыва) может помочь в обнаружении и характеристике парных излучателей.

2.4 Спектры излучения и поглощения пробного сигнала

Для вычисления спектра излучения необходимо воспользоваться результатами предыдущих разделов. Если разложить полную интенсивность излучения по модам, можно получить зависимость интенсивности от частоты излучения – спектр излучения. Так было показано выше, полная интенсивность определяется тензором $\vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}, t, t) = \sum_f \vec{\mathbf{W}}_f(\mathbf{r}, \mathbf{r}, t, t)$, компоненты которого содержат число некогерентных фотонов в моде f :

$$N_f = \langle \hat{a}_f^+ \hat{a}_f \rangle_f - \langle \hat{a}_f \rangle_f \langle \hat{a}_f^+ \rangle_f. \quad (2.26)$$

Энергию моды можно оценить, умножив число фотонов в моде на энергию одного фотона $\hbar\omega_f$. Учитывая геометрический фактор аналогично выражению для полной интенсивности, получим выражение для изменения энергии в моде f за счет некогерентных фотонов:

$$\frac{d}{dt}I_f = \frac{\sin^2 \beta}{r^2} \hbar\omega_f \frac{d}{dt} (\langle \hat{a}_f^\dagger \hat{a}_f \rangle_f - \langle \hat{a}_f \rangle_f \langle \hat{a}_f^\dagger \rangle_f). \quad (2.27)$$

Для вычисления средних значений фотонных операторов в (2.27) необходимо воспользоваться формальным решением уравнения для фотонной матрицы плотности ρ_f и применить приближение вращающейся волны. Тогда получим:

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{a}_f \rangle_f = \frac{1}{\hbar} \sum_i \lambda_f (\mathbf{e}_f \cdot \mathbf{d}_i) \langle \hat{\sigma}_i^- \rangle_i e^{-i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}_i} - i\nu_f \langle \hat{a}_f \rangle_f, \quad (2.28)$$

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{a}_f^\dagger \rangle_f = \frac{1}{\hbar} \sum_i \lambda_f (\mathbf{e}_f \cdot \mathbf{d}_i) \langle \hat{\sigma}_i^+ \rangle_i e^{i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}_i} - i\nu_f \langle \hat{a}_f^\dagger \rangle_f, \quad (2.29)$$

$$\frac{d}{dt} \langle \hat{a}_f^\dagger \hat{a}_f \rangle_f = \frac{1}{\hbar} \sum_i \lambda_f (\mathbf{e}_f \cdot \mathbf{d}_i) e^{i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}_i} (\langle \hat{a}_f \rangle_f \langle \hat{\sigma}_i^+ \rangle_i + \text{Tr}_{\{a\}} \{ \hat{\sigma}_i^+ g_{\{a\}(f)} \}) + h.c., \quad (2.30)$$

где $\nu_f = \omega_f - \omega_L$, а также был введен новый атомный оператор $g_{\{a\}(f)} = \text{Tr}_f \{ \hat{a}_f g_{\{a\}f} \}$. Тогда получим:

$$\frac{d}{dt} I_f = \frac{\sin^2 \beta}{r^2} \omega_f \sum_i \lambda_f (\mathbf{e}_f \cdot \mathbf{d}_i) e^{i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}_i} \text{Tr}_{\{a\}} \{ \hat{\sigma}_i^+ g_{\{a\}(f)} \} + h.c. \quad (2.31)$$

Таким образом, для нахождения энергии моды поля необходимо получить кинетическое уравнение для корреляционного оператора $g_{\{a\}(f)}$. Его можно получить, взяв уравнение (2.9) для $g_{\{a\}f}$ в следующем виде:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} g_{\{a\}f} = & \left[\sum_i H_i + H_f, g_{\{a\}f} \right] + \left[\sum_i \bar{V}_{if}, \rho_{aa'} \rho_f \right] \\ & + \left[\sum_i \left(V_{if} - \langle V_{if} \rangle_i + \sum_{f' \neq f} \langle \hat{V}_{if'} \rangle_{f'} \right), g_{\{a\}f} \right] + \sum_{f' \neq f} \text{Tr}_{f'} \left[\sum_i \hat{V}_{if}, g_{\{a\}ff'} \right]. \end{aligned} \quad (2.32)$$

Это соответствует использованию поляризационного приближения. Здесь также учтены корреляции более высокого порядка $g_{\{a\}ff'}$ для получения полного кинетического уравнения для $g_{\{a\}f}$ с учетом релаксаций и диполь-дипольного взаимодействия аналогично материальной матрице плотности $\rho_{\{a\}}$. Тогда из уравнения (2.32) в представлении лазерной отстройки и с учетом приближения вращающейся волны получаем уравнение для корреляционного оператора $g_{\{a\}(f)}$:

$$\begin{aligned}
& \frac{d}{dt} g_{\{a\}(f)} + i\nu_f g_{\{a\}(f)} + i \sum_i \Delta_i [\hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_i^-, g_{\{a\}(f)}] - i \sum_{i \neq j} \Omega_{ij} [\hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^-, g_{\{a\}(f)}] \\
& - i \sum_i [\Omega_i(\mathbf{r}_i) \hat{\sigma}_i^- + \Omega_i^*(\mathbf{r}_i) \hat{\sigma}_i^+, g_{\{a\}(f)}] \\
& + \sum_{i,j} \gamma_{ij} \{ [\hat{\sigma}_i^+, \hat{\sigma}_j^- g_{\{a\}(f)}] + [g_{\{a\}(f)} \hat{\sigma}_i^+, \hat{\sigma}_j^-] \} \\
& = \frac{1}{\hbar} \sum_i \lambda_f (\mathbf{e}_f \cdot \mathbf{d}_i) e^{-i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}_i} (\hat{\sigma}_i^- - \langle \hat{\sigma}_i^- \rangle) \rho_{\{a\}} \\
& + \frac{1}{\hbar} \sum_i \lambda_f (\mathbf{e}_f \cdot \mathbf{d}_i) e^{-i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}_i} I_f [\hat{\sigma}_i^-, \rho_{\{a\}}].
\end{aligned} \tag{2.33}$$

Из уравнения (2.33) видно, что выражение (2.31) для энергии I_f в моде f содержит слагаемые, пропорциональные I_f . Тогда I_f будем искать в следующей форме:

$$\frac{d}{dt} I_f = \alpha_f I_f + A_f, \tag{2.34}$$

где α_f – коэффициент поглощения, A_f – стационарный спектр излучения. Таким образом, необходимо привести выражение (2.33) к форме (2.34) и получить выражения для спектра излучения и поглощения пробного сигнала.

Уравнение (2.33) может быть записано в виде системы из 16 уравнений в матричной форме:

$$\frac{d}{dt} \vec{g} + M \vec{g} = \vec{q} + I_f \vec{s}, \tag{2.35}$$

где \vec{g} – вектор размерностью 16, построенный из элементов $g_{\{a\}(f)}$ в коллективном базисе (2.24):

$$\vec{g} = (g_{UU}, g_{US}, \dots, g_{GG}), \quad (2.36)$$

а вектора \vec{q} и \vec{s} получены из элементов правой части (2.33). В стационарном случае, положив $d\vec{g}/dt = 0$, решение системы (2.35) может быть получено как сумма двух частей - \vec{g}^q и \vec{g}^s , соответственно векторам \vec{q} и \vec{s} .

Тогда, приведя уравнение для I_f к виду (2.34) и соотнеся слагаемые, получим выражение для коэффициента поглощения

$$\alpha_f = 2 \frac{\sin^2 \beta}{r^2} \omega_f \lambda_f (\mathbf{e}_f \cdot \mathbf{n}_d) \text{Re} \{ |\mathbf{d}_1| (g_{GS}^s + g_{GA}^s + g_{SU}^s - g_{AU}^s) e^{i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}_1} + |\mathbf{d}_2| \{ g_{GS}^s - g_{GA}^s + g_{SU}^s + g_{AU}^s \} e^{i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}_2} \},$$

и спектра излучения

$$A_f = 2 \frac{\sin^2 \beta}{r^2} \omega_f \lambda_f (\mathbf{e}_f \cdot \mathbf{n}_d) \text{Re} \{ |\mathbf{d}_1| (g_{GS}^q + g_{GA}^q + g_{SU}^q - g_{AU}^q) e^{i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}_1} + |\mathbf{d}_2| \{ g_{GS}^q - g_{GA}^q + g_{SU}^q + g_{AU}^q \} e^{i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}_2} \}.$$

На Рис. 2.11–2.13 изображены спектры излучения (верхние графики) и коэффициенты поглощения (нижние графики) для трех пиков, соответствующих спектру возбуждения, изображенному на Рис. 2.2. Для пика, соответствующего сверхизлучательному состоянию, спектр излучения представляет собой картину, близкую к классическому спектру Моллоу резонансной флуоресценции одиночного излучателя в поле лазерной волны. Однако, в случае неидентичных излучателей спектры излучения и поглощения пробного сигнала несимметричны. На Рис. 2.14 показано изменение профилей спектров излучения и поглощения пробного сигнала с увеличением напряженности поля, что приводит к лучшему разрешению линий. Следует отметить, что для лучшего разрешения спектра излучения следует ожидать худшего разрешения спектра возбуждения вследствие уширения поля. Как упоминалось, диполь-дипольная связь чувствительна к ориентации дипольного момента, поэтому спектральная картина может резко меняться при настройке поляризации возбуждающего луча. Эти изменения представлены на Рис. 2.15 для случаев, когда поляризация падающего поля

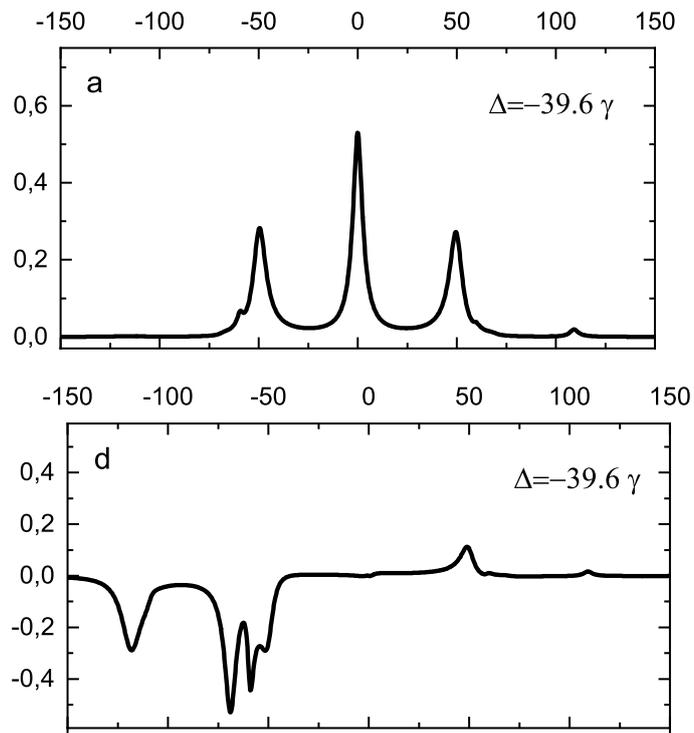


Рис. 2.11. Спектр излучения (верхний график) и коэффициент поглощения (нижний график) для соответствующего пика на Рис. 2.2.

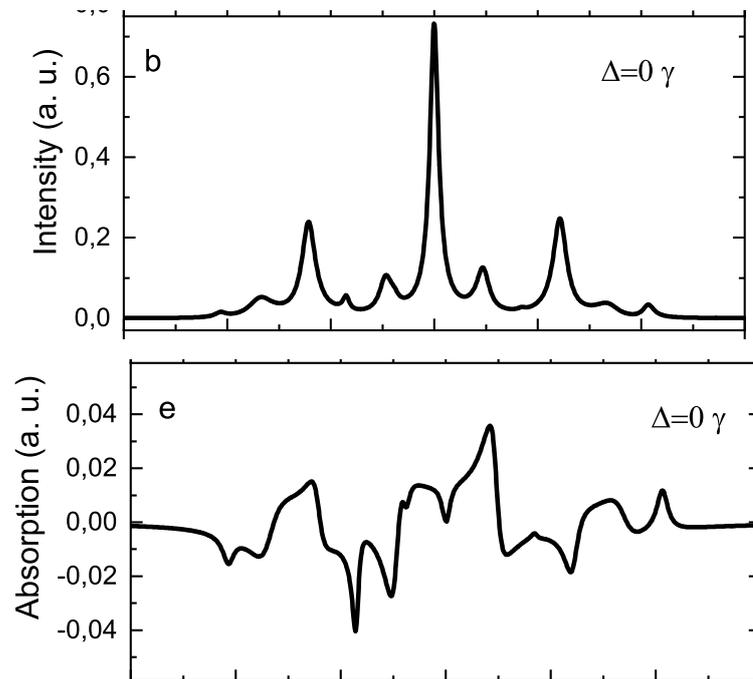


Рис. 2.12. Спектр излучения (верхний график) и коэффициент поглощения (нижний график) для соответствующего пика на Рис. 2.2.

составляет угол $\theta = \pi/2$ и $\theta = \pi/2$ с межатомной осью. Горизонтальные линии на Рис. 2.14-2.15 соответствуют профилям на Рис. 2.11-2.13.

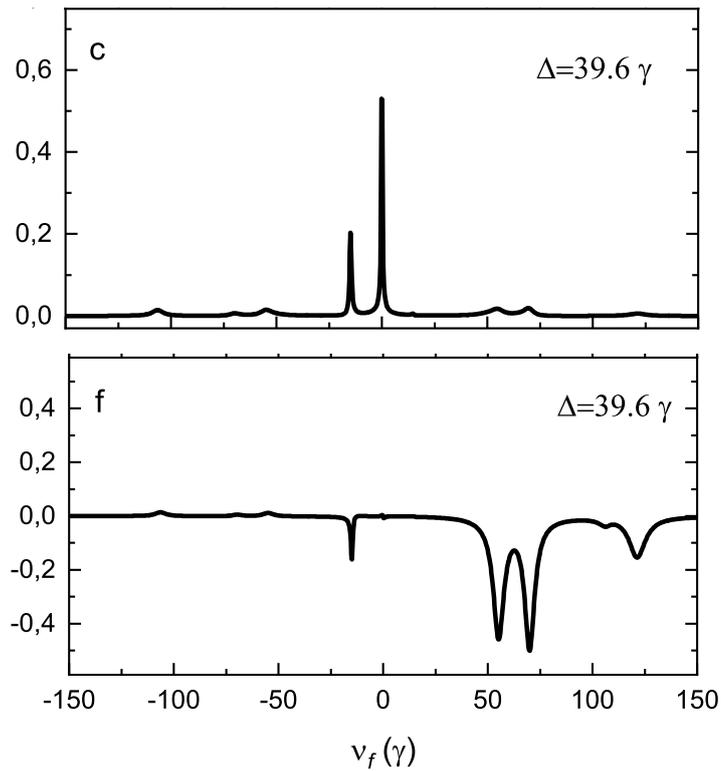


Рис. 2.13. Спектр излучения (верхний график) и коэффициент поглощения (нижний график) для соответствующего пика на Рис. 2.2.

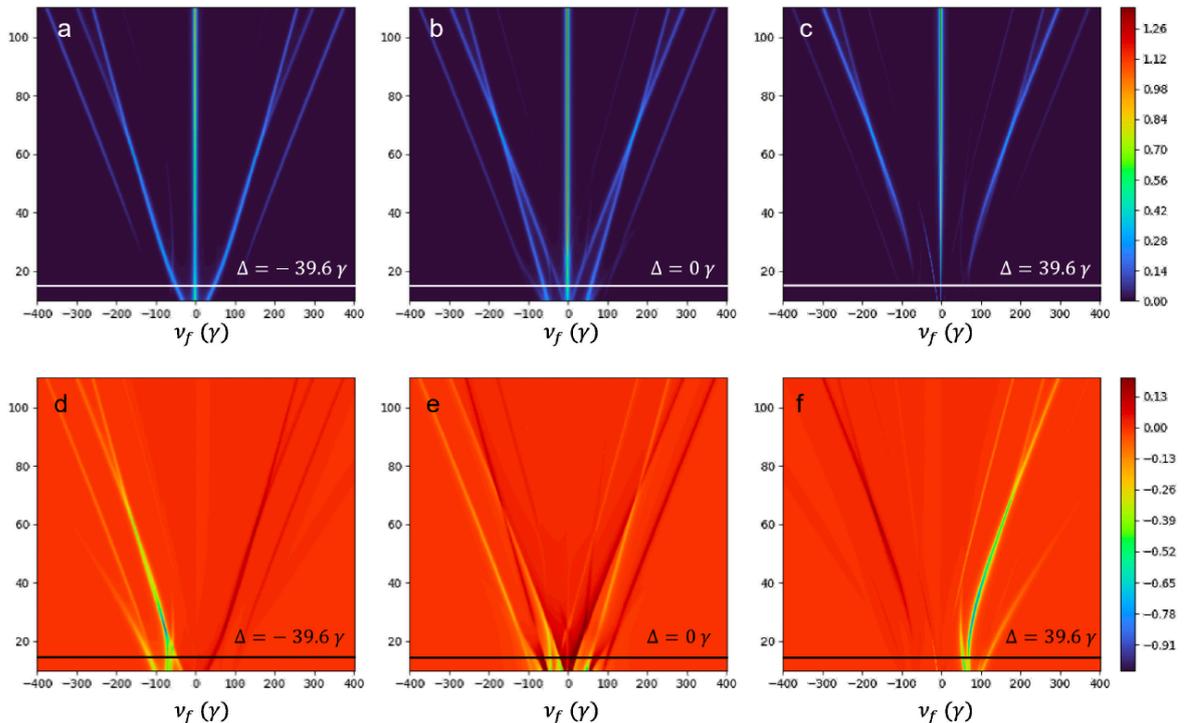


Рис. 2.14. Серия спектров кооперативной фотолуминесценции (a)-(c) и спектров поглощения слабого пробного пучка (d)-(f), рассчитанных для различной силы возбуждения системы. Данные в (e) увеличены с коэффициентом 10. Параметры соответствуют Рис. 2.2.

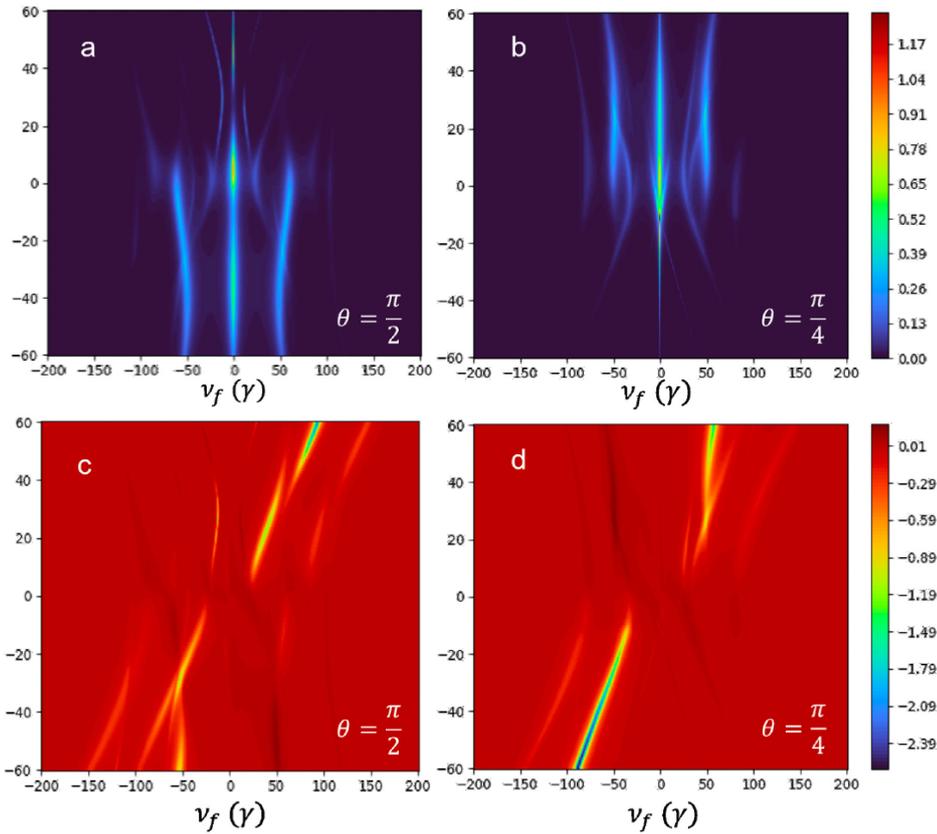


Рис. 2.15. Серия спектров кооперативной фотолюминесценции (а)-(б) и спектров поглощения слабого пробного пучка (с)-(д), рассчитанных для различной поляризации внешнего возбуждающего поля. Параметры соответствуют Рис. 2.2.

Таким образом, была получена замкнутая система уравнений для эволюции матрицы плотности пары частиц-излучателей, полевых мод и корреляционных матриц. При выводе системы уравнений был использован подход, основанный на цепочке уравнений ББГКИ, адаптированный к решению оптических и спектроскопических задач. Было получено основное управляющее уравнение для матрицы плотности двух излучателей, в котором слагаемые, отвечающие за диполь-дипольное взаимодействие, появились естественным образом в результате учета атом-фотонных корреляций в рамках использованного приближения обрыва цепочки ББГКИ. Полученные уравнения были использованы для численного моделирования спектра возбуждения фотолюминесценции, спектра излучения фотолюминесценции и спектра поглощения пробного сигнала. Спектральные зависимости возбуждения фотолюминесценции согласуются с экспериментальными результатами по наблюдению кооперативных пар

органических молекул терилена [7, 23, 82] и дибензантантрена (ДБАТТ) [8]. Таким образом, было показано, что модель двухуровневого излучателя в применении к описанию двух неодинаковых по моментам и частотам переходов квантовых частиц описывает наблюдаемые в экспериментах спектральные зависимости фотолюминесценции двух диполь-дипольно спутанных органических примесных молекул. Также было показано, что кооперативное спутывание двух молекул демонстрирует специфические изменения в спектре возбуждения фотолюминесценции в зависимости от направления поляризации возбуждающего лазерного пучка. В спектрах рассеянного излучения также можно наблюдать характерные черты, обусловленные диполь-дипольным перепутыванием квантовых излучателей.

Глава 3

Ансамбль излучателей в диэлектрической среде

Оптические свойства, проявляемые плотными атомными ансамблями, могут значительно отличаться от оптических свойств, проявляемых независимыми излучателями. Кооперативные взаимодействия приводят к таким эффектам как когерентное спонтанное излучение или сверхизлучение, коллективная флуоресценция. Этот круг явлений имеет долгую историю изучения, однако многие задачи, особенно в области теоретического описания, остаются нерешенными. Взаимодействие одиночного изолированного двухуровневого излучателя с полем монохроматической волны описывается системой уравнений Блоха [84]. Описание ансамбля таких излучателей под действием внешнего излучателя будет иметь более сложный вид. Наличие среды вокруг каждой частицы вносит изменения в динамику и спектральный состав излучения и должно учитываться, даже если среда является классическим диэлектриком.

Одним из проявлений отличия оптических свойств в плотных кооперативных системах является эффект оптической бистабильности. Бистабильностью называется явление, при котором для одних и тех же внешних параметров существуют два значения поляризации и населенностей возбужденных состояний частиц-излучателей. Этот эффект проявляется следующим образом. При медленном увеличении интенсивности возбуждения интенсивность люминесценции плавно увеличивается, затем, при достаточной мощности падающего поля, происходит резкий скачок выходящей интенсивности. Если же затем плавно уменьшать интенсивность падающего поля, то значение интенсивности излучения будет плавно уменьшаться и при определенном значении интенсивности возбуждения произойдет резкий спад интенсивности излучения. Таким образом, наблюдаются «переключения» интенсивности излучения. Это явление основано на кооперативной природе взаимодействия между атомами и полем и на сильной нелинейности этого взаимодействия. Для существования бистабильности необходимо наличие обратной связи [85]. Обратная связь может

быть как внешней (реализованной системой зеркал или интерференционных схем), так и внутренней, обусловленной внутренними явлениями в образце. Явление внешней оптической бистабильности впервые было предсказано в 1969 году [86] а затем было детально исследовано и в 1976 году наблюдалось в экспериментах на парах натрия с использованием непрерывного лазера на красителе для возбуждения атомов в ячейке между пластинами интерферометра Фабри-Перо [87]. Возможность возникновения оптической бистабильности в отсутствие внешней обратной связи впервые обсуждалась как результат межатомного взаимодействия (диполь-дипольного) [38]. Эта идея была далее развита в ряде работ [40,41,88]. При реализации эффекта внутренней оптической бистабильности проявляется нелинейная связь между приложенным полем, и полем, излучаемыми частицами, так как все диполи воздействуют друг на друга. Поэтому ключевую роль в бистабильности играют кооперативные эффекты. Экспериментально внутренняя оптическая бистабильность впервые наблюдалась для ионов иттербия Yb^{3+} в галоидных матрицах $\text{Cs}_3\text{Y}_2\text{Br}_9:\text{Yb}^{3+}$ [66]. Было обнаружено, что при температуре ниже 31К интенсивность люминесценции проявляет гистерезисный тип зависимости как функция интенсивности возбуждения. Также было обнаружено, что уменьшение температуры усиливает эффект и бистабильность становится более заметной, а при более высоких температурах бистабильность исчезает [66,67]. Зависимость отстройки частоты от разности населенностей обеспечивает наличие внутренней обратной связи и нелинейности взаимодействия излучателей с внешним полем, что приводит к бистабильности в решении стационарных уравнений. Впервые такая зависимость была введена через диполь-дипольное взаимодействие между излучателями [38]. Это взаимодействие выразилось в учете эффективного поля, действующего на излучатель, обусловленного поправкой Лоренца. Эта поправка отражает реакцию частиц на приложенное поле и влияние этой реакции на отдельно взятый излучатель. Эффективное поле, действующее на каждый излучатель, является суммой внешнего поля и локального, создаваемого другими излучателями в рамках модели Лоренца:

$$\mathbf{E}_L = \mathbf{E}_M + \frac{4\pi}{3} \mathbf{P}, \quad (3.1)$$

где \mathbf{E}_M есть макроскопическое (внешнее) поле, а \mathbf{P} – макроскопическая поляризация, отражающая реакцию остальных излучателей на внешнее поле. В линейно поляризующихся средах макроскопический дипольный момент $\mathbf{P} = N\mathbf{d}$ определяется микроскопическим дипольным моментом отдельного излучателя \mathbf{d} и числом излучателей N .

Математический аппарат, используемый в лазерной физике, нелинейной и квантовой оптике и других исследованиях в области взаимодействия излучения с веществом в значительной степени основан на анализе оптических уравнений Блоха. Поведение одиночного изолированного двухуровневого излучателя под действием внешнего поля описывается классической системой уравнений Блоха

$$\begin{aligned} \dot{W} &= -2\Omega Q - \frac{1}{T_1}(W - W_0), \\ \dot{D} &= \omega_{12}Q - \frac{1}{T_2}D, \\ \dot{Q} &= 2\Omega W - \omega_{12}D - \frac{1}{T_2}Q, \end{aligned} \quad (3.2)$$

где $W = \rho_{11} - \rho_{22}$ есть разность населенностей, а $D = \rho_{21} + \rho_{12}$ и $Q = -i(\rho_{21} - \rho_{12})$ – действительная и мнимая части поляризации. T_1 и T_2 – продольное и поперечное времена релаксации. Частота Раби $\Omega = \mathbf{d}_{12}\mathbf{E}(t)/\hbar$ определяется внешним полем $\mathbf{E}(t)$ и дипольным моментом перехода \mathbf{d}_{12} .

Если в выражении для частоты Раби заменить макроскопическое поле эффективным (3.1), в уравнениях возникают нелинейности:

$$\begin{aligned} \dot{W} &= -2\Omega Q - \frac{1}{T_1}(W - W_0), \\ \dot{D} &= (\omega_{12} - \xi W)Q - \frac{1}{T_2}D, \\ \dot{Q} &= -(\omega_{12} - \xi W)D + 2\Omega W - \frac{1}{T_2}Q, \end{aligned} \quad (3.3)$$

здесь $\xi = (2\pi N d^2)/3\hbar$ – параметр кооперативности. Таким образом, учет локального поля Лоренца приводит к зависимости резонансной частоты атомной

системы от инверсии населенности и появляется эффективное значение частоты перехода $\tilde{\omega}_{12} = \omega_{12} - \xi W$. Величина ξW встречается в литературе как красный сдвиг Лоренца.

Если рассмотреть стационарную задачу, сведя систему уравнений к одному уравнению относительно разности населенностей, получится полином третьей степени, который подразумевает наличие трех решений:

$$\xi^2 W^3 + (\xi^2 - 2\Delta\xi)W^2 + \left(2\Omega^2 + \Delta^2 + 2\Delta\xi + \frac{1}{4}\Gamma^2\right)W - \Delta^2 - \frac{1}{4}\Gamma^2 = 0. \quad (3.4)$$

Таким образом, решение системы уравнений (3.3) приведет к гистерезисному типу зависимости разности населенностей от интенсивности внешнего излучения. Такой квазиклассический подход дает наглядное объяснение возникновения внутренней бистабильности, исходя из полуклассических соображений о поведении диэлектрика в электрическом поле.

Также зародилось несколько направлений в теоретическом описании явления внутренней бистабильности, одной из основных идей которых являлось образование пар ионов редкоземельных металлов. Эти подходы учитывают более общие взаимодействия, чем эффекты локального поля Лоренца. Например, кроме диполь-дипольного взаимодействия были учтены сильные взаимодействия между возбужденными состояниями пар ионов, такие как кросс-релаксационные обмены энергией в газах, лавинная ап-конверсия и кооперативная ап-конверсия в твердых телах. Таким образом, обратная связь обуславливалась локальными полевыми эффектами, возникающими из ближних диполь-дипольных взаимодействий между двумя ионами в паре [66,67]. Возможность существования оптической бистабильности на парах атомов была также представлена в работе [89]. Был предложен механизм, включающий нелинейное изменение поглощения и механизм обратной связи для объяснения оптической бистабильности на основе тепловых эффектов, поскольку термические эффекты могут определять эмиссионные или абсорбционные свойства редкоземельного элемента, когда в материале индуцируется фазовый переход. В этом случае обратная связь обеспечивается криостатом, который удерживается при постоянной температуре.

Это приводит к изменению поведения поглощения в зависимости от мощности лазера: когда температура образца достигает точки, где поглощение быстро возрастает с температурой, при поглощении лазера генерируется большое количество тепла. Для рассеивания этого тепла температура образца должна увеличиваться, чтобы увеличить охлаждение, обеспечиваемое криостатом. Это дополнительно увеличивает поглощение и, следовательно, поглощенную мощность лазера и температуру образца. Наконец, равновесие достигается при температуре, значительно превышающей начальную. Это наблюдается как переключение в поглощении образца [90,91]. Также были представлены теоретические подходы к описанию эффектов локального поля в тонких пленках и исследованию решений, позволяющих реализацию бистабильного отклика в таких системах [92].

Бистабильность в оптическом отклике системы имеет практический интерес, так как наличие бистабильности создает потенциальную возможность для построения систем оптической логики и замещения электронов фотонами в системах данных будущего. Возможность применения этого эффекта в оптических переключателях стимулировало появление большого числа исследований. Помимо интереса к оптической бистабильности с точки зрения практических применений как оптического аналога транзистора, оптического счетчика или элемента оптической памяти, демонстрация этого явления вызвала значительный интерес с фундаментальной точки зрения как довольно ясный пример спонтанного упорядочения в открытой, стационарной системе, взаимодействующей со светом.

Настоящая глава посвящена изучению взаимодействия ансамблей оптических центров в прозрачной диэлектрической среде с электромагнитным излучением.

3.1 Модель. Коллективный ансамбль и локальное поле

Рассматривается взаимодействие поля излучения с ансамблем материальных частиц. Изучаемая система состоит из совокупности неподвижных материальных частиц двух типов: индекс “ a ” относится к частицам, представляющим собой

двухуровневые излучатели с частотой перехода, близкой к частоте внешнего поля, индекс “ b ” относится к частицам, представляющим собой двухуровневые излучатели с частотой перехода, лежащей далеко от резонанса с внешним полем. Эти частицы образуют прозрачную диэлектрическую среду. Вырождение уровней и нерезонансные переходы в системе не учитываются в рамках данной модели. Рис. 3.1 иллюстрирует выбранную модель, где ω_a и ω_b - частоты соответствующих переходов в частицах сорта “ a ” и “ b ”. Эти частицы образуют прозрачную среду, заполняющую пространство между излучателями. Концентрация частиц среды должна быть много больше концентрации излучателей $N_b \gg N_a$.

Гамильтониан рассматриваемой системы, как и прежде имеет вид $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}$, где энергия свободных частиц теперь состоит из трех слагаемых:

$$\begin{aligned} \hat{H}_0 &= \sum_a \hat{H}_a + \sum_b \hat{H}_b + \sum_f \hat{H}_f \\ &= \sum_a \hbar\omega_a \hat{\sigma}_a^+ \hat{\sigma}_a^- + \sum_b \hbar\omega_b \hat{\sigma}_b^+ \hat{\sigma}_b^- + \sum_f \hbar\omega_f \hat{a}_f^\dagger \hat{a}_f, \end{aligned} \quad (3.5)$$

где первое и второе слагаемое представляют собой энергии невозмущенных частиц излучателей и среды, а последнее слагаемое описывает энергию свободного квантованного поля.

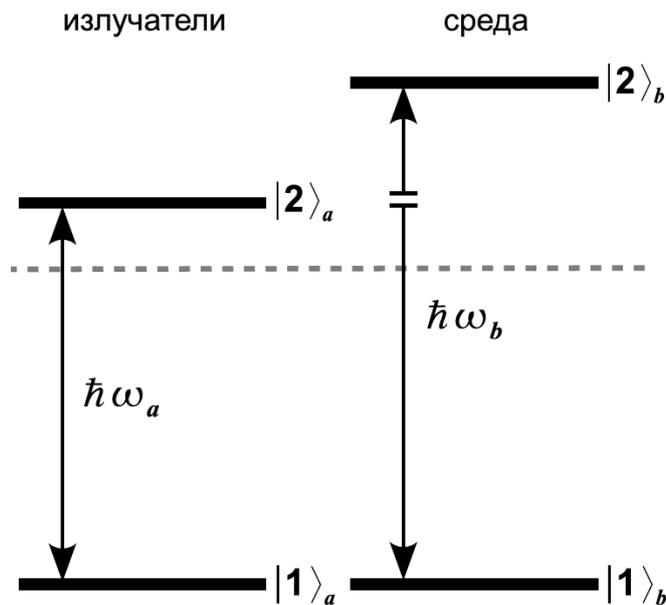


Рис. 3.1. Сорта материальных частиц, входящих в систему

Взаимодействие частиц с полем рассматривается в рамках электрического дипольного приближения. Оператор взаимодействия \hat{V} теперь состоит из двух частей - взаимодействия резонансных частиц с полем и частиц среды и записывается через операторы дипольных моментов $\hat{\mathbf{d}}_i$ и мод поля $\hat{\mathbf{E}}_f$ в виде:

$$\hat{V} = \sum_f \sum_a \hat{V}_{af} + \sum_f \sum_b \hat{V}_{bf}, \hat{V}_{af} = -\hat{\mathbf{d}}_a \cdot \hat{\mathbf{E}}_f, \hat{V}_{bf} = -\hat{\mathbf{d}}_b \cdot \hat{\mathbf{E}}_f. \quad (3.6)$$

В операторе взаимодействия при этом появятся временные зависимости

$$\mathbf{d}_a(t) = \mathbf{d}_a \hat{\sigma}_a^- e^{-i\omega_a t} + H.c., \mathbf{d}_b(t) = \mathbf{d}_b \hat{\sigma}_b^- e^{-i\omega_b t} + H.c. \quad (3.7)$$

Оператор квантованного электрического поля в точке \mathbf{r} имеет вид:

$$\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) = i \sqrt{\frac{2\pi\hbar\omega_f}{V}} \hat{a}_f \mathbf{e}_f e^{-i\omega_f t + i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} + H.c., \quad (3.8)$$

где V – объем квантования.

3.2 Управляющее уравнение для излучателя в ансамбле

Взяв частичный след от уравнения (1.1) и произведя кластерное разложение аналогично предыдущей главе, получим уравнение для одночастичной матрицы плотности излучателя ρ_a

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho_a - \sum_f [\langle \hat{V}_{af} \rangle_f, \rho_a] = \sum_f Tr_f [\hat{V}_{af}, g_{af}], \quad (3.9)$$

частиц среды ρ_b

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho_b - \sum_f [\langle \hat{V}_{bf} \rangle_f, \rho_b] = \sum_f Tr_f [\hat{V}_{bf}, g_{bf}], \quad (3.10)$$

и уравнение для матрицы плотности каждой из фотонных мод

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho_f - \left[\sum_a \langle \hat{V}_{af} \rangle_a + \sum_b \langle \hat{V}_{bf} \rangle_b, \rho_f \right] = \sum_a Tr_a [\hat{V}_{af}, g_{af}] + \sum_b Tr_b [\hat{V}_{bf}, g_{bf}]. \quad (3.11)$$

Также необходимо записать уравнения для корреляционных операторов:

$$i\hbar \frac{d}{dt} g_{af} - \left[\sum_a \langle \hat{V}_{af} \rangle_a + \sum_b \langle \hat{V}_{af} \rangle_b, g_{af} \right] = [\bar{V}_{af}, \rho_a \rho_f] + \sum_b [Tr_b \{ \hat{V}_{bf} g_{ab} \}, \rho_f], \quad (3.12)$$

$$i\hbar \frac{d}{dt} g_{bf} - \left[\sum_a \langle \hat{V}_{bf} \rangle_a + \sum_b \langle \hat{V}_{bf} \rangle_b, g_{bf} \right] = [\bar{V}_{bf}, \rho_b \rho_f] + \sum_a [Tr_a \{ \hat{V}_{af} g_{ab} \}, \rho_f], \quad (3.13)$$

$$i\hbar \frac{d}{dt} g_{ab} - \sum_f [\langle \hat{V}_{af} \rangle_f + \langle \hat{V}_{bf} \rangle_f, g_{ab}] = \sum_f [Tr_f \{ \hat{V}_{af} g_{af} \}, \rho_a] + \sum_f [Tr_f \{ \hat{V}_{bf} g_{bf} \}, \rho_b], \quad (3.14)$$

где снова $\bar{V}_{if} = \hat{V}_{if} - \langle \hat{V}_{if} \rangle_i - \langle \hat{V}_{if} \rangle_f$. Здесь не учитываются двухчастичные корреляции $g_{ff'} = g_{aa'} = g_{bb'} = 0$, что позволяет получить замкнутую систему уравнений и решать задачу динамики радиационной релаксации излучающих частиц. Это соответствует борновскому приближению с частичным учетом поляризационных членов. Таким образом, получается полная система уравнений, описывающих эволюцию частиц системы и корреляционных операторов. Одночастичные уравнения связаны через соответствующие корреляции с фотонными модами g_{af} и g_{bf} . Для получения управляющего уравнения для излучателя необходимо подставить формальное решение уравнений (3.10)-(3.14) в (3.9).

Теперь, используя определение (3.2), аналогично предыдущей главе получим:

$$\frac{d}{dt} \rho = \frac{i}{\hbar} \left[\hat{\mathbf{d}}_a(t) \cdot (\boldsymbol{\varepsilon}_0(\mathbf{r}_a, t)) + \int_0^t dt' \left\{ \sum_{a' \neq a} \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_a - \mathbf{r}_{a'}, t - t') \mathbf{p}_{a'}(t') + \sum_b \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_a - \mathbf{r}_b, t - t') \mathbf{p}_b(t') \right\}, \rho \right]$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{i}{\hbar} \left[\hat{\mathbf{d}}_a(t), \int_0^t dt' \{ \vec{\mathbf{G}}^+(0, t-t') \rho \hat{\mathbf{d}}_a(t') + \vec{\mathbf{G}}^-(0, t-t') \hat{\mathbf{d}}(t') \rho \} \right] \\
& - \frac{1}{\hbar^2} \left[\hat{\mathbf{d}}_a(t), \int_0^t dt' \vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}_a, \mathbf{r}_a, t, t') [\hat{\mathbf{d}}_a(t'), \rho] \right] \\
& + \frac{i}{\hbar} \left[\hat{\mathbf{d}}_a(t), \int_0^t dt' \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_a - \mathbf{r}_b, t-t') \hat{\mathbf{\Pi}}_b(t') \right].
\end{aligned} \tag{3.15}$$

Перепишав уравнение (3.9) через полевые величины:

$$\frac{d}{dt} \rho_a = \frac{i}{\hbar} [\hat{\mathbf{d}}_a(t) \mathcal{E}(\mathbf{r}_a, t), \rho_a(t)] + \frac{i}{\hbar} [\hat{\mathbf{d}}_a(t) \cdot \hat{\Phi}(\mathbf{r}_a, t)],$$

для поля $\mathcal{E}(\mathbf{r}_a, t)$, получим

$$\begin{aligned}
\mathcal{E}(\mathbf{r}, t) &= \mathcal{E}_0(\mathbf{r}, t) + \int_0^t dt' \sum_a \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, t-t') \mathbf{p}_a(t') \\
&+ \int_0^t dt' \sum_b \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_b, t-t') \mathbf{p}_b(t').
\end{aligned} \tag{3.16}$$

Здесь снова присутствует поле $\mathcal{E}_0(\mathbf{r}, t)$, которое отвечает внешнему полю возбуждения, $\mathbf{p}_i = Tr_i \{ \hat{\mathbf{d}}_i(t) \rho_i(t) \}$ – индуцированные дипольные моменты каждой материальной частицы.

Аналогично для $\hat{\Phi}(\mathbf{r}, t)$ получим

$$\begin{aligned}
\hat{\Phi}(\mathbf{r}, t) &= \int_0^t dt' \{ \vec{\mathbf{G}}^+(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, t-t') \bar{\mathbf{d}}_a(t') \rho_{\{a\}}(t') \\
&+ \vec{\mathbf{G}}^-(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, t-t') \rho_{\{a\}}(t') \bar{\mathbf{d}}_a(t') \} + \int_0^t dt' \sum_b \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_b, t-t') \hat{\mathbf{\Pi}}_b(t').
\end{aligned} \tag{3.17}$$

Здесь $\hat{\mathbf{\Pi}}_b(t') = Tr_b \{ \hat{\mathbf{d}}_b(t') g_{ab}(t') \}$ – аналог среднего дипольного момента, выраженный через корреляционный оператор g_{ab} . Наличие последнего слагаемого в уравнении приводит к преобразованию тензора Грина в вакууме в тензор Грина в среде с диэлектрической проницаемостью ϵ и к появлению множителя $l(\epsilon)$ –

коэффициента пропорциональности между полем, действующим на отдельный атом (локального поля), и средним полем в среде $\mathbf{E}_{loc} = l(\varepsilon)\mathbf{E}$. В выражении (3.16) для $\widehat{\Phi}(\mathbf{r}, t)$ приводятся лишь те слагаемые, которые дают вклад в величину скорости спонтанной радиационной релаксации в среде. Также не учтены члены, описывающие вынужденные переходы в излучателях, не обусловленные внешним возбуждением.

Для вычисления среднего поля, действующего на излучатель, будем рассматривать атомы b -типа как сплошную среду. Для этого заменим сумму по атомам среды в (3.16) на интеграл по всему пространству:

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\varepsilon}_{act}(\mathbf{r}, t) = & \boldsymbol{\varepsilon}_0(\mathbf{r}, t) + \int_0^t dt' \sum_a \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, t - t') \mathbf{p}_a(t') \\ & + \int_0^t dt' \int_V d\mathbf{r}_b \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_b, t - t') \mathbf{P}_b(t'). \end{aligned} \quad (3.18)$$

В случае постоянной плотности атомов среды макроскопическая поляризация определяется как $\mathbf{P}_b = N_b \mathbf{p}_b$.

Исключая из уравнения частицы среды, можно записать:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho - \hat{l}(\varepsilon) \frac{i}{\hbar} \left[\hat{\mathbf{d}}(t) \cdot \left(\boldsymbol{\varepsilon}_0(\mathbf{r}, t) + \int_0^t dt' \sum_{a' \neq a} \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_{a'}, t - t') \mathbf{p}_{a'}(t') \right), \rho \right] \\ = \hat{l}(\varepsilon) \frac{i}{\hbar} \left[\hat{\mathbf{d}}_a(t), \int_0^t dt' \{ \vec{\mathbf{G}}_\varepsilon^+(0, t - t') \rho \hat{\mathbf{d}}_a(t') + \vec{\mathbf{G}}_\varepsilon^-(0, t - t') \hat{\mathbf{d}}(t') \rho \} \right]. \end{aligned} \quad (3.19)$$

Где действующее поле $\mathbf{E}_{act}(\mathbf{r}_a, t)$

$$\boldsymbol{\varepsilon}_{act}(\mathbf{r}_a, t) = \boldsymbol{\varepsilon}_0(\mathbf{r}_a, t) + \int_0^t \sum_{a' \neq a} \vec{\mathbf{G}}_\varepsilon(\mathbf{r}_a - \mathbf{r}_{a'}, t - t') \cdot \mathbf{p}_{a'}(t') dt'.$$

Пользуясь соотношением

$$\boldsymbol{\varepsilon}_{act}(\mathbf{r}_a, t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \boldsymbol{\varepsilon}_{act}(\mathbf{r}_a, \omega) e^{-i\omega t} d\omega,$$

можно прийти к выражениям для локального поля:

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_{act}(\mathbf{r}_a, \omega) &= l(\epsilon(\omega)) \left(\boldsymbol{\epsilon}_0(\mathbf{r}_a, \omega) + \frac{4\pi}{3\epsilon(\omega)} \mathbf{P}(\omega) \right) \\ &= l(\epsilon(\omega)) \boldsymbol{\epsilon}_0(\mathbf{r}_a, \omega) + \epsilon(\omega) \frac{4\pi}{3} \mathbf{P}(\omega),\end{aligned}$$

где $\epsilon(\omega) = l(\epsilon(\omega))/\epsilon(\omega)$. Поляризация, порождаемая другими излучателями:

$$\mathbf{P}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} N_a \text{Tr}(\hat{\mathbf{d}}(t)\rho) e^{i\omega t} dt = 2\pi\delta(\omega - \omega_a) N_a \mathbf{d}\rho_{12} + 2\pi\delta(\omega + \omega_a) N_a \mathbf{d}\rho_{12}.$$

Поле $\mathbf{E}_0(\mathbf{r}_a, \omega)$ как и раньше представляет собой внешнее возбуждающее поле.

Тогда для элементов матрицы плотности

$$\mathcal{E}_{act}(\mathbf{r}_a, t) = \mathcal{E} \text{Re}(l(\omega_a) e^{i\omega_0 t}) + \frac{4\pi}{3} N_a \mathbf{d} (\epsilon(\omega_a) \rho_{21} e^{-i\omega_a t} + \epsilon^*(\omega_a) \rho_{12} e^{i\omega_a t}).$$

Аналогично получим:

$$\begin{aligned}\hat{\Phi}_{act}(\mathbf{r}, t) &= l^*(\omega_a) \vec{\mathbf{G}}_{\epsilon}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, \omega_a) \cdot \mathbf{d}\rho\sigma^+ e^{i\omega_a t} \\ &\quad + l(\omega_a) \vec{\mathbf{G}}_a(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, \omega_a) \cdot \mathbf{d}\sigma^- \rho e^{-i\omega_a t}.\end{aligned}$$

Окончательно, используя приближение вращающейся волны и переходя к системе координат, вращающейся с лазерной частотой ω_L , получим управляющее уравнение для материальной частицы в виде:

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt} \rho &= -i\Delta[\sigma^+\sigma^-, \rho] + i[\Omega^*\sigma^+ + \Omega\sigma^-, \rho] + i\Delta_{\epsilon}[\rho_{21}\sigma^+ + \rho_{12}\sigma^-, \rho] \\ &\quad - \gamma_{\epsilon}[\rho_{21}\sigma^+ - \rho_{12}\sigma^-, \rho] - \gamma(\sigma^+\sigma^-\rho + \rho\sigma^+\sigma^- - 2\sigma^-\rho\sigma^+).\end{aligned}\quad (3.20)$$

Здесь частотные коэффициенты содержат комплексные значения $l(\omega_a)$, $\epsilon(\omega_a)$ и $\epsilon(\omega_0)$, для которых используем разложение на действительную и мнимую части, т.е., $l = l_R + il_I$, $\epsilon = \epsilon_R + i\epsilon_I$ и $\sqrt{\epsilon} = n + ik$. В новых обозначениях эффективная отстройка $\Delta = (\omega_a - \omega_0) - \delta$, где радиационный сдвиг частоты:

$$\delta_{\epsilon} = \frac{1}{\hbar} \mathbf{d} \cdot \text{Re}\{l(\omega_a) \mathbf{G}_{\epsilon}(0, \omega_a)\} \cdot \mathbf{d} = \left(l_R - \frac{\kappa l_R + n l_I}{2\delta_0} \gamma_0 \right) \delta_0,$$

где $\delta_0 = 1/\hbar(\mathbf{d} \cdot \text{Re}\{\mathbf{G}_0(0, \omega_a)\} \cdot \mathbf{d})$ – значение для вакуума, $\Delta_{\epsilon} = \epsilon_R(4\pi/3)N_a|\mathbf{d}|^2$ – динамический сдвиг частоты, $\gamma_{\epsilon} = \epsilon_I(4\pi/3)N_a|\mathbf{d}|^2$ – кооперативный коэффициент затухания и, наконец, γ – эффективная скорость релаксации:

$$\gamma_\epsilon = \frac{1}{\hbar} \mathbf{d} \cdot \text{Im}\{l(\omega_a \mathbf{G}_\epsilon(0, \omega_a))\} \cdot \mathbf{d} = \left(n l_R - \frac{\kappa - 2\delta_0}{\gamma_0} l_I \right) \gamma_0,$$

где $\gamma_0 = 1/\hbar(\mathbf{d} \cdot \text{Im}\{\mathbf{G}_0(0, \omega_a)\} \cdot \mathbf{d})$ – естественная ширина линии в вакууме.

Уравнение типа (3.20) может быть переписано в виде системы для элементов матрицы плотности:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{11} &= i l_R \Omega (\rho_{21} - \rho_{12}) + l_I \Omega (\rho_{21} + \rho_{12}) + u_I 2\xi |\rho_{21}|^2 + \gamma_\epsilon \rho_{22}, \\ \frac{d}{dt} \rho_{22} &= -i l_R \Omega (\rho_{21} - \rho_{12}) - l_I \Omega (\rho_{21} + \rho_{12}) - u_I 2\xi |\rho_{21}|^2 - \gamma_\epsilon \rho_{22}, \\ \frac{d}{dt} \rho_{21} &= i(\Delta - \delta_\epsilon - u_R \xi (\rho_{11} - \rho_{22})) \rho_{12} - i l_R \Omega (\rho_{11} - \rho_{22}) \\ &\quad - l_I \Omega (\rho_{11} - \rho_{22}) - (\gamma_\epsilon + u_I \xi (\rho_{11} - \rho_{22})) \rho_{12}, \\ \rho_{21} &= \rho_{12}^*, \quad \rho_{11} + \rho_{22} = 1. \end{aligned} \quad (3.21)$$

Перейдя к переменным $W = \rho_{11} - \rho_{22}$, $D = \rho_{21} + \rho_{12}$ и $Q = -i(\rho_{21} - \rho_{12})$, получим:

$$\begin{aligned} \dot{W} &= -l_R 2\Omega Q + l_I 2\Omega D + \xi u_I (D^2 + Q^2) - \gamma_\epsilon (W - W_0), \\ \dot{D} &= (\Delta - \delta_\epsilon - u' \xi W) Q - l'' 2\Omega W - \left(\frac{\gamma_\epsilon}{2} + u_I \xi W \right) D, \\ \dot{Q} &= -(\Delta - \delta_\epsilon - u_R \xi W) D + l_R 2\Omega W - \left(\frac{\gamma_\epsilon}{2} + u_I \xi W \right) Q. \end{aligned} \quad (3.22)$$

Здесь $u(\epsilon) = l(\epsilon)/\epsilon = u_R + i u_I$ – коэффициент ослабления локального поля ансамбля за счет локального поля среды.

В стационарном случае получаем

$$\rho_{21} = \frac{\Omega^* \omega}{(\Delta - \Delta_\epsilon \omega) - i(\gamma + \gamma_\perp + \gamma_\epsilon \omega)},$$

что дает

$$|\rho_{21}|^2 = \frac{|\Omega|^2 \omega^2}{(\Delta - \Delta_\epsilon \omega)^2 + i(\gamma + \gamma_\perp + \gamma_\epsilon \omega)^2},$$

и

$$2\text{Re}(\Omega \rho_{21}) = \frac{2|\Omega|^2 \omega (\gamma + \gamma_\perp + \gamma_\epsilon \omega)}{(\Delta - \Delta_\epsilon \omega)^2 + i(\gamma + \gamma_\perp + \gamma_\epsilon \omega)^2}.$$

Выражая ρ_{22} через разность населенностей W : $2\rho_{22} = 1 - W$, $W = \rho_{11} - \rho_{22}$, получим, что $\gamma(1 - W) = 2\text{Re}(\Omega \rho_{21}) - 2\gamma_\epsilon |\rho_{21}|^2$.

Рассмотрим стационарные решения системы уравнений (3.21). Приняв производные по времени равными нулю и разрешив систему уравнений относительно разности населенностей, получим полином третьей степени:

$$\gamma(1 - W) = \frac{2|\Omega|^2 W(\gamma + \gamma_{\perp})}{(\Delta - \Delta_{\epsilon} W)^2 + i(\gamma + \gamma_{\perp} + \gamma_{\epsilon} W)^2}.$$

Можно преобразовать это выражение к виду:

$$A_3 W^3 + A_2 W^2 + A_1 W + A_0 = 0, \quad (3.22)$$

где коэффициенты полинома:

$$\begin{aligned} A_3 &= \eta^2, \\ A_2 &= -\eta^2 - \zeta^2, \\ A_1 &= \zeta^2 + \Delta^2 + \Gamma^2 + \beta^2, \\ A_0 &= -\Delta^2 - \Gamma^2. \end{aligned}$$

Здесь введен фактор кооперативности $\xi = (4\pi/3)N_a|\mathbf{d}_a|^2$, тогда $\Delta_{\epsilon} = \epsilon_R \xi$ и $\gamma_{\epsilon} = \epsilon_I \xi$. Также введены параметры $\eta^2 = |\epsilon|^2 \xi^2$, $\zeta^2 = (2\epsilon_R \Delta - \epsilon_I \Gamma)\xi$ и $\beta^2 = |\Omega|^2 \Gamma/\gamma$, где $\Gamma = \gamma_{\perp} + \gamma$, $l(\epsilon)$ - поправочный коэффициент локального поля, создаваемый матрицей с комплексной диэлектрической проницаемостью $\epsilon = \epsilon(\omega_0)$ на частоте ω_0 внешнего поля. Здесь также введена поперечная скорость релаксации γ_{\perp} .

3.3 Стационарные решения и бистабильность

Перепишем (3.22) в следующем виде:

$$\begin{aligned} \eta^2 W^3 + (\zeta^2 - \eta^2)W^2 + \left(2\beta^2 + (\Delta - \delta_{\epsilon})^2 + \frac{\gamma_{\epsilon}^2}{4} - \zeta^2\right)W \\ - (\Delta - \delta_{\epsilon})^2 - \frac{\gamma_{\epsilon}^2}{4} = 0, \end{aligned} \quad (3.23)$$

где $\eta^2 = (u_R \xi)^2 + (u_I \xi)^2 = |u(\epsilon)|^2 \xi^2$ - перенормированный фактор кооперативности; $\zeta^2 = (u_I \gamma_{\epsilon} - 2u_R(\Delta - \delta_{\epsilon}))\xi$ - перекрестные произведения фактора кооперативности с γ_{ϵ} и Δ ; $\beta^2 = (l_R \Omega)^2 + (l_I \Omega)^2 = |l(\epsilon)|^2 \Omega^2$ - эффективное значение частоты Раби Ω , перенормированное на $l(\epsilon)$.

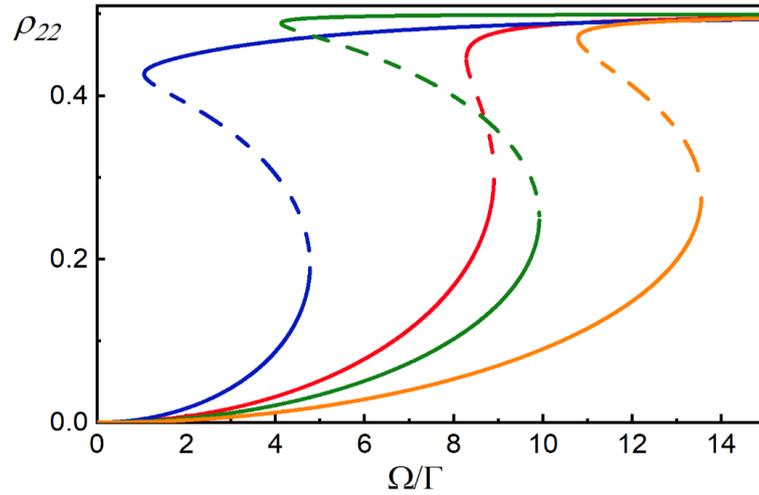


Рис. 3.2. Зависимость населенности возбужденного уровня ρ_{22} от значений частоты Раби Ω , нормированной на естественную ширину линии Γ . Используемые параметры: синяя линия: $\Delta = 2\Gamma, \xi = 27\Gamma$; зелёная линия: $\Delta = 1\Gamma, \xi = 42\Gamma$; красная линия: $\Delta = -2\Gamma, \xi = 32\Gamma$, оранжевая линия: $\Delta = -2\Gamma, \xi = 52\Gamma$.

В зависимости от частоты Раби Ω , кубическое уравнение (3.23) имеет три действительных решения, которые формируют петлю гистерезиса для населенности возбужденного состояния излучателя $\rho_{22} = (1-W)/2$.

На Рис. 3.2 представлена серия кривых зависимости населенности возбужденного состояния от интенсивности падающего излучения. Графики показывают, что форма линии чувствительна к внутренним параметрам, таким как Δ и ξ . Населенность возбужденного состояния определяет полную интенсивность излучения $I_{out} \sim \Gamma\rho_{22}$. Это демонстрирует наличие «тусклого» и «яркого» режимами флуоресценции. Под интенсивностью падающего излучения далее будем подразумевать частоту Раби Ω , так как этот параметр напрямую определен амплитудой падающего поля. Для удобства вычислений все величины были перенормированы на естественную ширину линии Γ . Величина радиационного сдвига частоты $\delta_0 = 0,01 \Gamma$, действительная и мнимая части диэлектрической проницаемости среды принимают значения: $\varepsilon_R(\omega) = 1,5$, $\varepsilon_I(\omega) = 0,001$. Таким образом, среда является слабопоглощающей.

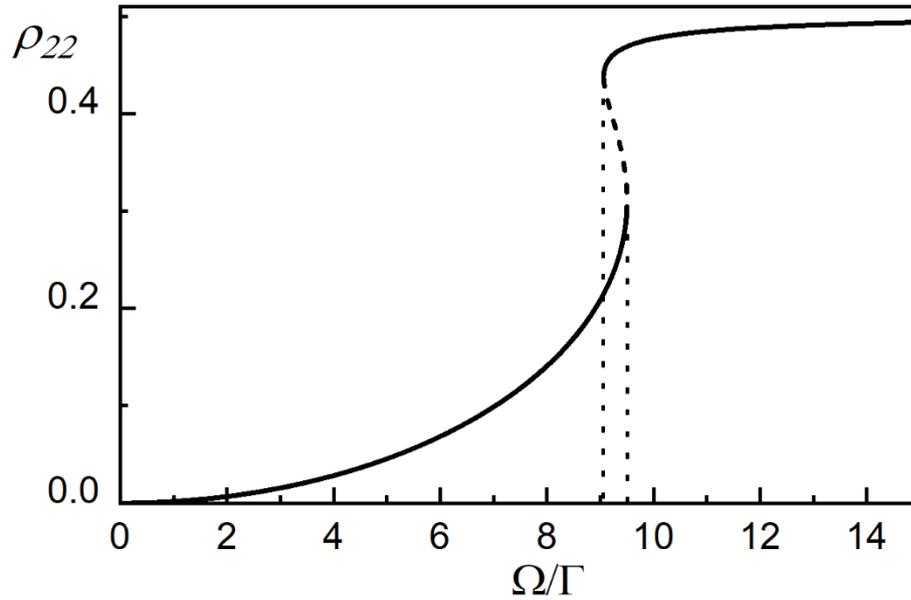


Рис. 3.3. Зависимость населенности возбужденного уровня ρ_{22} от частоты Раби Ω .
Используемые параметры: $\Delta = -2,34\text{Г}$, $\xi = 33,5\text{Г}$.

Все зависимости характеризуются двумя параметрами – критическими значениями частоты Раби Ω_{cr} , при которых происходит переключение режима излучения. При адиабатическом увеличении интенсивности внешнего поля, интенсивность флуоресценции будет принимать значения нижнего устойчивого состояния кривой гистерезиса, затем, достигнув критического значения Ω_{cr}^{\uparrow} . При дальнейшем увеличении интенсивности произойдет переход из одного стационарного состояния в другое. При обратном уменьшении интенсивности возбуждения интенсивность флуоресценции будет принимать значения верхнего устойчивого состояния кривой и затем, достигнув критического значения Ω_{cr}^{\downarrow} , произойдет обратный переход из яркого состояния в тусклое. Подберем параметры системы таким образом, чтобы Ω_{cr}^{\uparrow} и Ω_{cr}^{\downarrow} были близки (Рис. 3.3). В таком случае переключения вверх и вниз будут происходить в небольшом диапазоне интенсивности возбуждения. Более того, система будет более чувствительна к малейшим изменениям внутренних параметров

Уравнение (3.18) можно преобразовать в разрешимую форму $id\rho/dt = 1/\hbar[\hat{H}^{rw}, \rho] + i\hat{R}(\rho)$ путем применения приближения Борна-Маркова, преобразования в представление Шредингера и перехода во вращающуюся

систему координат с матрицей плотности ρ . Здесь \hat{H}^{rw} - гамильтониан с эффективной отстройкой Δ и эффективной частотой Раби $\Omega = \Omega(\rho)$, обеспечивающей обратную связь. Оператор $\hat{R}(\rho) = \gamma/2\hat{\mathcal{L}}_{\sigma^-}(\rho) + \gamma_{\perp}\hat{D}(\rho)$ описывает радиационную релаксацию с помощью оператора Линдблада $\hat{\mathcal{L}}_{\hat{\sigma}}(\rho) = 2\hat{\sigma}\rho\hat{\sigma}^{\dagger} - \hat{\sigma}^{\dagger}\hat{\sigma}\rho - \rho\hat{\sigma}^{\dagger}\hat{\sigma}$ и скорость дефазировки с помощью $\hat{D}(\rho) = 2\hat{\sigma}_z\rho\hat{\sigma}_z - \hat{\sigma}_z\hat{\sigma}_z\rho - \rho\hat{\sigma}_z\hat{\sigma}_z$, где $\hat{\sigma}_{\pm}$ и $\hat{\sigma}_z$ - проецирующие атомные операторы, γ и γ_{\perp} - эффективные продольные и поперечные скорости релаксации. Стоит обратить внимание, что слагаемое с дефазировкой не следует из уравнения (1), но может быть получено, как в работах [93,94]. Можно переписать ρ в базисе векторов Блоха как $\rho = 1/2(\hat{\mathbf{I}} + \mathbf{B} \cdot \boldsymbol{\sigma})$, где $\hat{\mathbf{I}}$ - единичная матрица, $\mathbf{B}^T = \{\rho_{21} + \rho_{12}, i(\rho_{12} - \rho_{21}), \rho_{11} - \rho_{22}\} = \{D, Q, W\}$ - вектор Блоха с матричными элементами ρ_{ij} , а $\boldsymbol{\sigma}$ - вектор с матрицами Паули в качестве компонентов. Разрешая основное уравнение относительно разности населенностей W в стационаре (при $t \rightarrow \infty$), мы получаем полином:

$$\eta^2 W^3 - (\eta^2 + \zeta^2)W^2 + (\zeta^2 + \Delta^2 + \Gamma^2 + \beta^2)W - (\Delta^2 + \Gamma^2) = 0, \quad (3.24)$$

который в зависимости от параметров имеет либо один действительный корень w , либо три решения W_1, W_2 , и W_3 , создающих область бистабильности. Параметры $\eta^2 = |\epsilon|^2 \xi^2$ и $\zeta^2 = (2\epsilon_R \Delta - \epsilon_I \Gamma)\xi$ содержат коэффициент кооперативности $\xi = \xi(N_e)$, который возникает из локального поля ансамбля и, таким образом, является функцией плотности N_e либо абсолютного количества излучателей. Матрица вносит коэффициент, зависящий от комплексной диэлектрической проницаемости $\epsilon = l(\epsilon)/\epsilon = \epsilon_R + i\epsilon_I$. Физически η^2 представляет собой перенормированный квадрат ξ , а ζ^2 - это перекрестный член ξ с эффективной отстройкой Δ и скоростью затухания Γ . Последними являются $\Delta = (\omega_e - \omega_0) - \delta$ и $\Gamma = \gamma_{\perp} + \gamma$, где $\delta = (l_R - (\kappa l_R + n l_I)\gamma_0/(2\delta_0))\delta_0$ - эффективный радиационный сдвиг частоты, а $\gamma = (n l_R - (\kappa - 2\delta_0/\gamma_0)l_I)\gamma_0$. Эти выражения следует понимать как поправки к естественным значениям $\delta_0 = (1/\hbar)\text{Re}(\mathbf{d} \cdot \mathbf{G}_{ee}^0(\omega_e) \cdot \mathbf{d})$ и $\gamma_0 = (2/\hbar)\text{Im}(\mathbf{d} \cdot \mathbf{G}_{ee}^0(\omega_e) \cdot \mathbf{d})$, где тензор Грина записан для вакуума. Локальное поле от матрицы вносит множители $l(\epsilon) = l_R + i l_I$, а также $\sqrt{\epsilon} = n + i\kappa$, которые представляют собой показатель

преломления и коэффициент поглощения соответственно. Наконец, $\beta = \sqrt{2}|l(\varepsilon)|\Omega_0$ - перенормированное значение частоты Раби $\Omega_0 = dE/\hbar$, где d - момент перехода, а E - амплитуда управляющего поля. Коэффициент $l(\varepsilon) = E_l/E$ является отношением между локальными и средними амплитудами поля в матрице, поэтому его можно записать как $l = (\varepsilon + 2)/3$ или $l = 3\varepsilon/(2\varepsilon + 1)$ в зависимости от способа обойти излучатели во время пространственного интегрирования. Для единственного излучателя, или когда $N_e \rightarrow 0$, члены с η^2 и ζ^2 исчезают, бистабильность невозможна, и w становится стандартной компонентой вектора Блоха \mathbf{V}_0 , т.е., $W_0 = (\Delta^2 + \Gamma^2)/(\Delta^2 + \Gamma^2 + \beta^2)$, которая при $\varepsilon = 1$ принимает классический вид. Таким образом, большая или меньшая потребляемая мощность требуется для создания возбуждений для фотолюминесценции желаемой интенсивности.

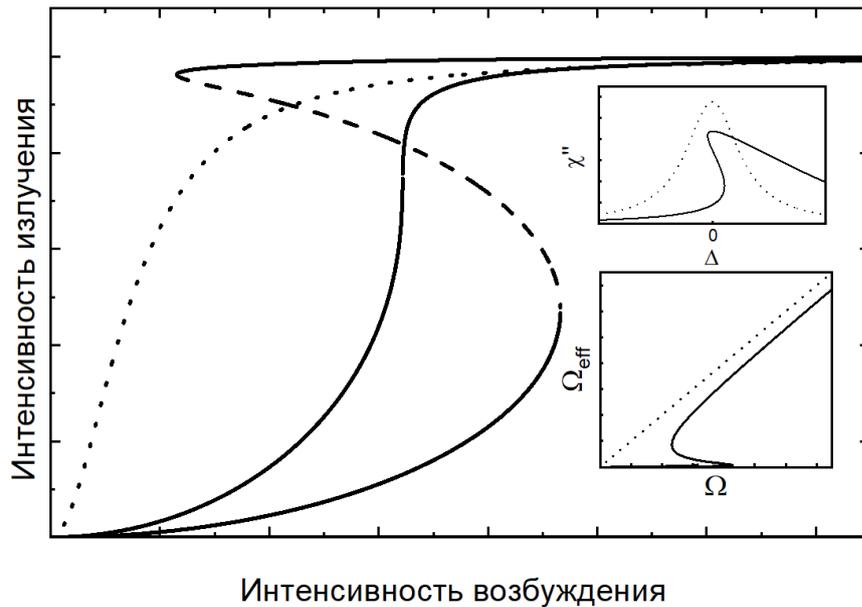


Рис. 3.4. Набор устойчивых решений для различных параметров системы. Пунктирная линия показывает нормальную кривую насыщения (для изолированного излучателя). Вставки иллюстрируют спектры поглощения одиночного излучателя (пунктирная линия) и ансамбля с внутренней оптической бистабильностью (сплошная линия) и эффективную частоту Раби в зависимости от исходной Ω_0 .

Это аналогично классической картине нелинейных колебаний, описанной, например, в [95]. В качестве альтернативы, на нижней вставке показано действующее поле $\Omega \sim \Omega_0 + A(\Omega_0)$ в зависимости от входного поля Ω_0 , где A - размерный коэффициент, который зависит от того, как построено локальное поле. Для умеренных входных сигналов действующее поле ослабляется откликом ансамбля и не позволяет эффективно создавать возбуждения. При более сильных полях процесс, отвечающий за построение отклика, исчезает в некоторой пороговой точке, и система совершает скачок туда, где $\Omega \sim \Omega_0$. Рис. 3.4 показывает корни уравнения (3.23) как функции возбуждения Ω_0 . Поскольку для двухуровневой системы полная интенсивность излучения должна быть $I \sim \gamma W$, где W — это населенность возбужденного состояния, можно построить безразмерную интенсивность $I(\Omega_0) = (1/2)(1 - W(\Omega_0))$. Подстановка W_0 дает нормальную кривую насыщения, в то время как решения W описывают S-образную кривую интенсивностей. Ветви W_1 и W_2 являются стабильными решениями и относятся к тусклому и яркому излучениям соответственно, в то время как W_3 – нестабильное решение, как это может быть показано при помощи стандартного анализа.

3.4 Переходные процессы и переключения

Между стационарными состояниями системы возможны переходы. Такие переходы возможны при изменении внешних либо внутренних параметров. С нижней ветви такой переход может произойти при увеличении интенсивности внешнего поля в результате флуктуации, тогда, находясь вблизи критического значения Ω_{cr} система может перейти в верхнее состояние. Также переход может произойти в результате флуктуациях внутренних параметров системы, которые приведут к изменению формы линии. Начальными условиями для решения этой задачи будут служить значения населенности и поляризации, соответствующие стационарному решению при значении амплитуды лазерного поля равной пороговому значению $\Omega = \Omega_{cr}$ на нижней ветви (Рис. 3.5).

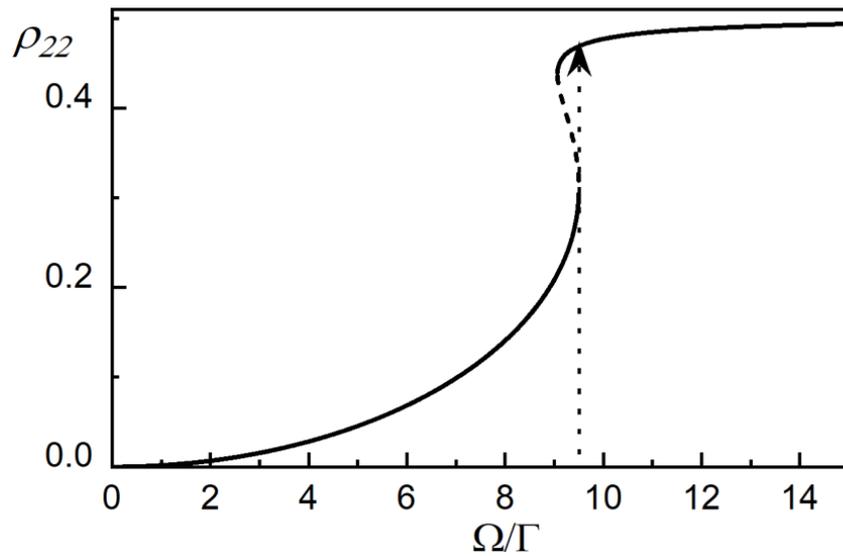


Рис. 3.5. Зависимость населенности возбужденного уровня излучателя ρ_{22} от амплитуды приложенного лазерного поля при $\Delta = -2.34\Gamma$ и $\xi = 35\Gamma$, $\Omega^* = 9.85\Gamma + 1\% = 9.9485\Gamma$.

Затем будем решать нестационарную задачу эволюции излучателя во времени при малой флуктуации интенсивности внешнего поля Ω . Переход может также произойти вследствие флуктуации отстройки Δ или параметра кооперативности ξ . В ходе временной эволюции состояние излучателя с нижней ветви перейдет на верхнюю ветвь.

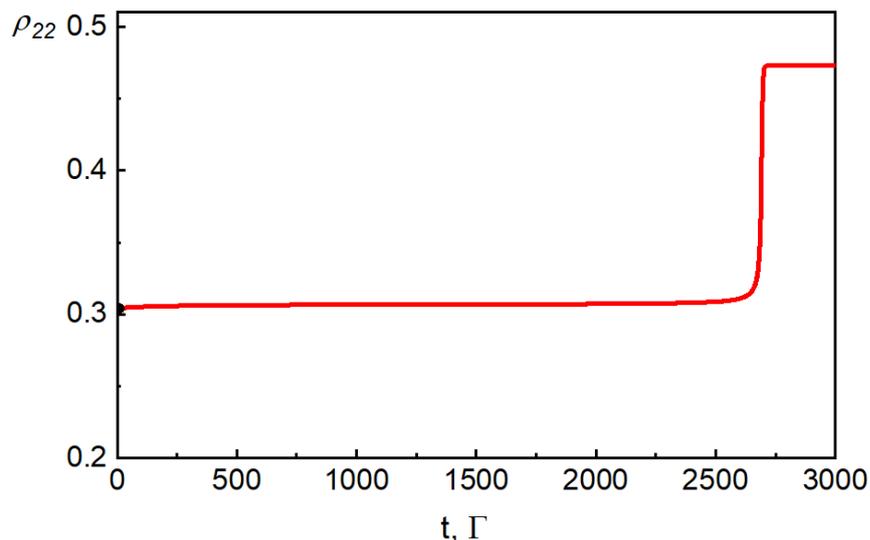


Рис. 3.6. Эволюция во времени населенности возбужденного состояния излучателя при изменении внешнего поля $\Omega^* = \Omega_{cr} + \delta\Omega$, при котором существует одно устойчивое решение. Используемые параметры $\Delta = 3\Gamma$, $\zeta = 50\Gamma$, $\Omega = 15.67\Gamma$.

На Рис. 3.6 изображена эволюция во времени населенности верхнего уровня системы. Из графика видно, что переход происходит не мгновенно, а в течение долгого времени ($t \approx 3000/\Gamma$).

Пусть в начальный момент времени система не возбуждена. Населенность возбужденного уровня и поляризация равны нулю. Рассмотрим эволюцию системы при включении поля интенсивностью $\Omega = \Omega_{cr}^\downarrow$.

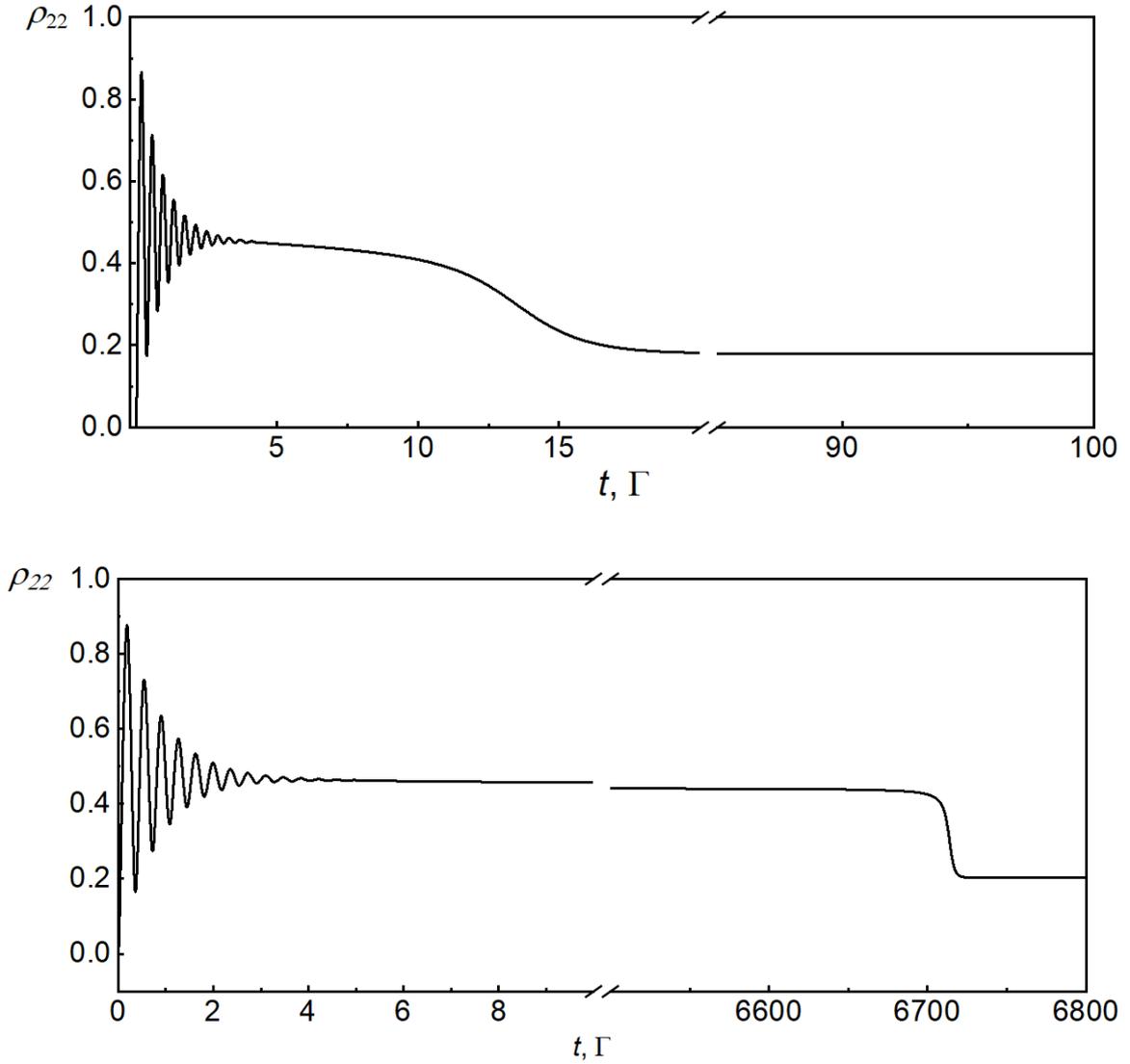


Рис. 3.7. Эволюция во времени населенности возбужденного состояния излучателя при включении внешнего поля, при котором существует одно устойчивое решение. Верхний график: приложенное поле составляет $\Omega = 0.2 \Omega_{cr}$, нижний график: приложенное поле составляет $\Omega = 0.99 \Omega_{cr}$. Используемые параметры $\Delta = 3\Gamma$, $\zeta = 50\Gamma$.

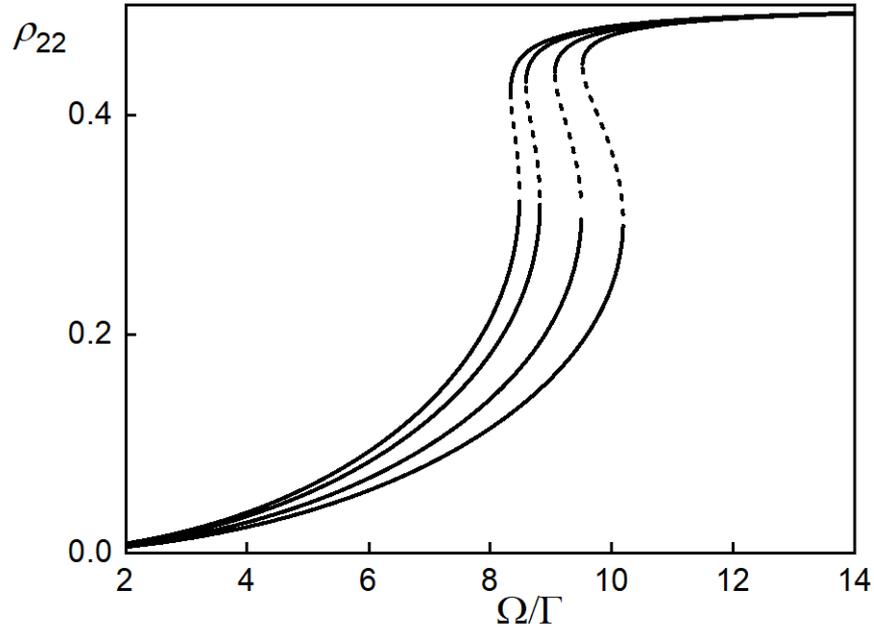


Рис. 3.8. Семейство кривых стационарных решений, соответствующих различному значению параметра кооперативности ξ при $\Delta = -2.34\Gamma$ и $\xi = 29\Gamma$, 30.5Γ , 33.5Γ , 36.5Γ (графики сверху вниз).

Численное решение указывает на тот факт, что при наличии двух возможных стационарных состояний невозбужденная система при воздействии на нее внешним полем переходит в яркое состояние. Таким образом, возбуждение идет на возбуждение излучателя, а не на создание макроскопической поляризации.

Численное решение показывает, что несмотря на наличие лишь одного устойчивого решения, система долго время находится в «ярком» состоянии «1» (близкое к значению населенности при $\Omega = \Omega_{cr}^1$) и лишь спустя $t \approx 6700/\Gamma$ переходит в устойчивое состояние «2». Такое поведение системы можно охарактеризовать как конкуренцию двух процессов – создание макроскопической поляризации и население возбужденного состояния. Пусть теперь интенсивность внешнего поля будет значительно отстроена от критического значения. В таком случае также будет существовать единственное стационарное решение на нижней ветви. Эволюция системы в этой ситуации представлена на Рис. 3.7. Из графика видно, что даже при таком подборе параметров, система некоторое время находится в «ярком» состоянии (соответствующем значению населенности при $\Omega = \Omega_{cr}$), а затем переходит в нижнее стационарное состояние.

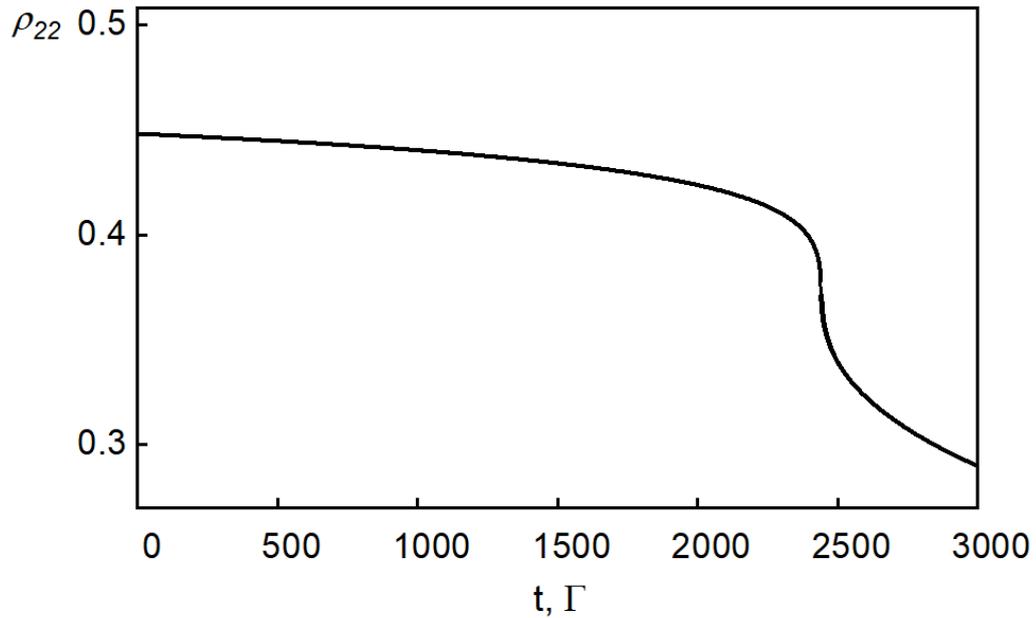


Рис. 3.9. Модель эволюции во времени населенности возбужденного состояния излучателя при изменении параметра кооперативности ξ . Используемые параметры $\Delta = -2.34\Gamma$, $\Omega = 9.67\Gamma$. За начало отсчета времени выбран момент включения лазерного поля Ω . Симуляции типичного временного профиля спада интенсивности, наблюдаемого в эксперименте [96]

Как уже отмечалось, форма линии гистерезиса чувствительна к внутренним параметрам системы. Рассмотрим следующую ситуацию. Пусть внутренние параметры системы (отстройка Δ , параметр кооперативности ξ) медленно изменяются во времени, а интенсивность внешнего излучения остается неизменной. На Рис. 3.8 изображено семейство кривых стационарных решений, соответствующих различному значению параметра кооперативности ξ .

Если система изначально находится в «ярком» состоянии, интенсивность возбуждения постоянная и равна Ω_0 , а ξ изменяется (в данном случае увеличивается), то форма линии будет меняться и значение решения на верхней ветви гистерезиса будет уменьшаться, следовательно, будет наблюдаться медленное уменьшение интенсивности излучения. Пусть изменение параметра ξ происходит по экспоненциальному закону (почти линейному на данных масштабах) $\xi = \xi_0 * \exp(t/10^5)$, $\xi_0 = 32.64$, диапазон изменения значения ξ : [32.64, 35.75] за время $t \approx 8000/\Gamma$. На Рис. 3.9 изображена модель эволюции во

времени населенности возбужденного состояния излучателя при изменении параметра кооперативности ξ .

В работе [96] был описан оригинальный эксперимент по лазерной фотолюминесцентной спектроскопии микрокристаллов алмаза (см. Рис. 3.10) с центрами окраски Ge-вакансия, в котором интенсивность фотолюминесценции менялась от яркой к тусклой и наоборот при неизменной интенсивности возбуждения (см. Рис. 3.11). Это явление наблюдалось при значениях мощности возбуждения выше порогового значения, как следует из Рис. 3.12.

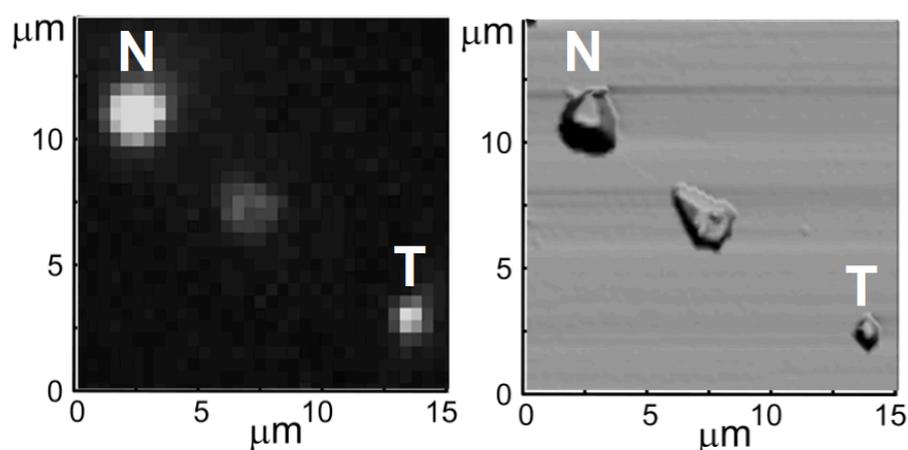


Рис. 3.10. Флуоресцентное изображение (слева) и изображения АСМ (справа) изучаемого микроалмаза (помечен “N”) в работе [96]

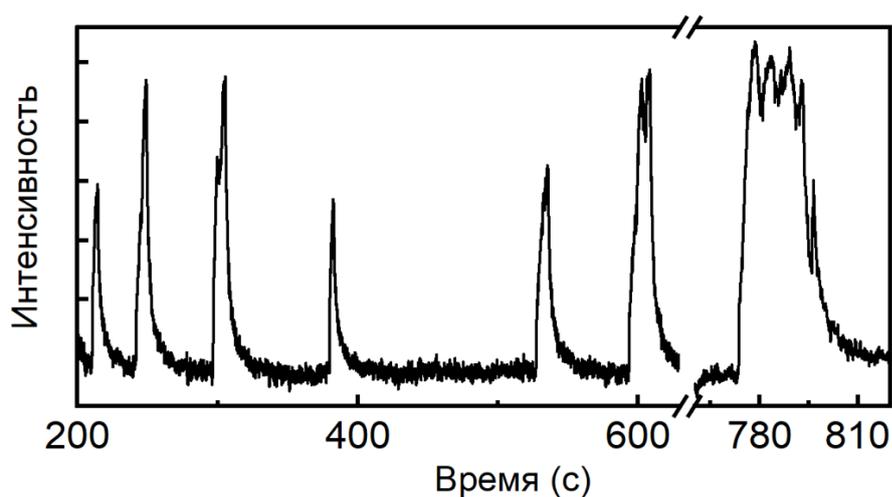


Рис. 3.11. Характерная временная динамика интенсивности фотолюминесценции, наблюдаемой в работе [96].

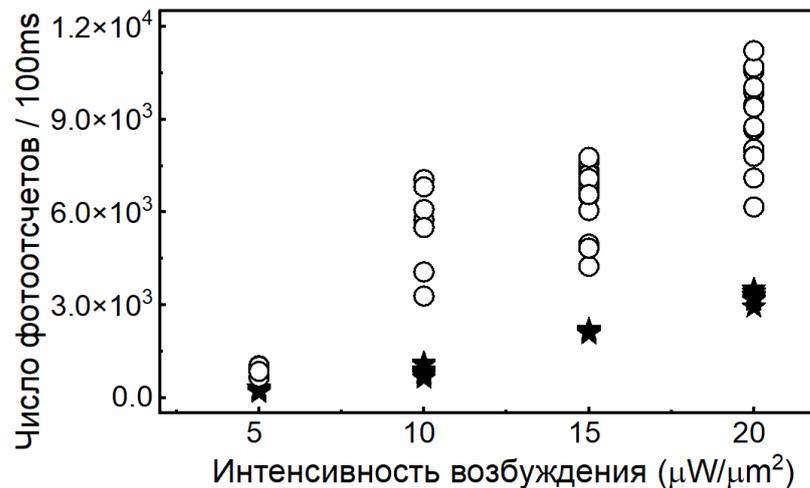


Рис. 3.12. Разброс интенсивностей тусклого (звезды) и яркого (круги) уровней люминесценции в зависимости от интенсивности возбуждения [96].

Неустойчивости с длительными переходными процессами могут быть признаками коллективного поведения в многочастичной системе. В связи с этим рассмотрим явление оптической би- и мультистабильности. Такая нестабильность может развиваться, если условия обеспечивают оптическую обратную связь и нелинейности в реакции системы на падающее излучение. Находясь в устойчивом состоянии, в параметрах системы могут возникать некоторые изменения, которые вынуждают ее переключаться в другое стационарное за конечное время. Известно, что в обоих случаях переход из одного устойчивого состояния в другое [20, 21] имеет длительную динамику [22–24]. Для объяснения явления би- и мультистабильности были разработаны различные теории, в которых для описания излучателей используются двухуровневые и многоуровневые атомоподобные схемы. Было показано, что зависимости очень чувствительны к параметрам, таким как отстройка пробного и связывающего полей, мощности полей и плотности излучателей. Пороговые значения бистабильности, а также переключения между режимами были описаны как управляемые путем изменения этих параметров. Поскольку в рассматриваемой системе нет внешней обратной связи, рассматривается явление внутренней оптической бистабильности или мультистабильности. В этих случаях положительная обратная связь является внутренней и обеспечивается вторичным полем, генерируемым излучателями, как

часть некоторого сложного коллективного отклика на внешнее возбуждение. S-образная область имеет границы на оси Ω_0 , установленные пороговыми значениями Ω_0^\downarrow и Ω_0^\uparrow . Пороги и ширина зоны бистабильности $\Omega_0^\uparrow - \Omega_0^\downarrow$ чувствительны к параметрам в уравнении. Заметим, что в нашей теории каждый параметр, то есть кооперативность или плотность излучателей, отстройка и скорости релаксации, формально зависит от характеристик и текущего состояния среды-носителя. Таким образом, можно предположить, что они могут быть плавающими в реальных условиях и, следовательно, заставить стационарные состояния и пороги мигрировать, как показано на Рис. 3.8. Если система, скажем, настроена вблизи Ω_0^\uparrow , то из-за миграции (медленно повышение) возбуждения Ω_0 в какой-то момент должна покинуть S-образную область. Это заставляет систему переходить в яркое состояние выше (быстрый подъем). Моделирование быстрого подъема проводилось путем решения уравнений движения для $\mathbf{V}^T(t) = \{W(t), D(t), Q(t)\}$ с начальными условиями $\mathbf{V}^T(0) = \{W_1(\Omega_0^\uparrow), D_1(\Omega_0^\uparrow), Q_1(\Omega_0^\uparrow)\}$ и $\Omega_0 = \Omega_0^\uparrow + \delta\Omega$, где $\delta\Omega \ll \Omega_0^\uparrow$. Было установлено, что рост может длиться десятки тысяч времен жизни возбуждённого состояния. Это согласуется с другими теориями внутренней бистабильности [19, 29, 24]. Оказавшись в ярком состоянии, система может вернуться к тусклому излучению аналогичным образом, то есть, сначала медленно опускаясь с верхнего устойчивого состояния, а затем, достигнув порога миграции Ω_0^\downarrow , вернуться в тусклое состояние. Эти процессы были смоделированы и показаны на Рис. 3.9. Профили и повторяемость вспышек могут быть обеспечены квазициклическими параметрами, таким как γ_\perp (температура) или N_a (гашение нескольких излучателей) из-за изменений локальных полей. Уравнение также обеспечивает возврат в яркое состояние после прерывания возбуждения, что соответствует наблюдению (см. Рис. 3.7, Рис. 3.13). Разброс стационарных состояний яркой фотолюминесценции свойственен многоуровневым системам, как описано в [97].

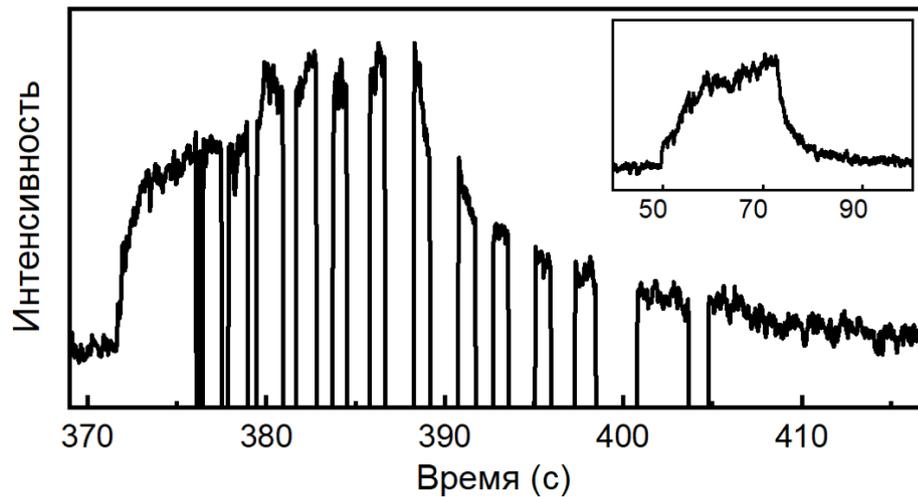


Рис. 3.13. Временная эволюция интенсивности фотолуминесценции во время одиночного всплеска с периодическим прерыванием постоянного возбуждения. На вставке показан аналогичный одиночный всплеск, наблюдаемый без прерывания возбуждения [96].

Таким образом, была продемонстрирована возможность индуцированных и самопроизвольных переключений между стационарными значениями интенсивности флуоресценции в рамках модели ансамбля двухуровневых атомов, в котором проявляются эффекты локальных полей, формируемых самим ансамблем и средой-носителем. Проиллюстрированы различные случаи, при которых переключение интенсивности происходит на масштабах времен, на несколько порядков превышающих время жизни возбужденного состояния. Полученные результаты численного моделирования показывают возможность существования эффектов, наблюдавшихся во флуоресценции микрокристалла алмаза с германиевыми центрами окраски [96].

Заключение

Основные результаты и выводы диссертационной работы можно сформулировать следующим образом:

1. Получена замкнутая система уравнений для описания взаимодействия ансамбля квантовых излучателей и мод квантованного электромагнитного поля на основе цепочки уравнений ББГКИ для редуцированных одночастичных матриц плотности и многочастичных корреляционных матриц.
2. Получено основное управляющее уравнение для матрицы плотности парного двухуровневого излучателя в поле непрерывного лазерного возбуждения, содержащих операторы, описывающие коллективные процессы взаимодействия и радиационной релаксации.
3. Получены уравнения для вычисления спектра возбуждения фотолюминесценции, спектра испускания фотолюминесценции и спектра поглощения пробного сигнала для пары неидентичных двухуровневых квантовых излучателей в поле лазерной волны с учетом произвольной геометрии возбуждения и детектирования.
4. Произведен численный расчет стационарного спектра возбуждения фотолюминесценции, спектра испускания фотолюминесценции и спектра поглощения пробного сигнала. Произведена серия численных расчетов наблюдавшихся в эксперименте характерных зависимостей спектров возбуждения фотолюминесценции пары органических молекул в твердотельной матрице. Показано соответствие численных расчетов и наблюдавшихся эффектов.
5. Показано как при изменении угла между направлением поляризации возбуждающего света с осью кооперативной пары происходит спектральная миграция положений максимумов в спектре возбуждения фотолюминесценции кооперативной пары неидентичных квантовых излучателей. Показано согласие рассчитанных зависимостей с

экспериментальными данными для кооперативной пары органических молекул в твердотельной матрице.

6. Получена общая система уравнений для описания фотолюминесценции ансамбля неподвижных излучателей, внедренных в слабо поглощающую диэлектрическую среду.
7. Получены аналитические выражения и общий вид поправки для скорости радиационной релаксации излучателя в среде и для действующего на излучатель эффективного локального поля, определяемого свойствами среды-носителя.
8. Произведен расчет динамики населенностей системы квантовых излучателей в диэлектрической среде и полной интенсивности фотолюминесценции. Проведен анализ пороговых оптических явлений, связанных с нелинейной динамикой возбужденных состояний излучателей.
9. Исследован процесс оптического переключения системы из состояния с тусклым уровнем интенсивности фотолюминесценции в состояние с ярким уровнем интенсивности. Произведена симуляция наблюдаемых в эксперименте по лазерной фотолюминесцентной спектроскопии микрокристаллов алмаза с центрами окраски Ge-вакансия.
10. Предложена интерпретация наблюдавшегося явления спонтанных возрастаний интенсивности фотолюминесценции микрокристалла алмаза с германиевыми центрами окраски.

В заключение автор выражает благодарность и большую признательность научному руководителю Гладушу Максиму Геннадьевичу за помощь на всех этапах выполнения диссертации и за безграничное терпение и усердие, с которым он формировал мои научные взгляды, научному консультанту Наумову Андрею Витальевичу за многочисленные обсуждения и ценную помощь при подготовке и написании рукописи.

Автор признателен Еремчеву Ивану Юрьевичу за плодотворную совместную работу и переданные знания в области техники эксперимента и обработки экспериментальных данных.

Также автор выражает благодарность коллегам по лаборатории, в особенности Каримуллину Камиллю Равкатовичу и Смирновой Екатерине Александровне, за дружелюбную атмосферу, поддержку и помощь в течение моей учебы и работы.

И, конечно же, автор благодарит своих родных и близких, в особенности маму Ольгу Витальевну, за поддержку на этом пути.

Список литературы

1. Андреев А.В., Емельянов В.И., Ильинский Ю.А. Кооперативные явления в оптике. Сверхизлучение. Бистабильность. Фазовые переходы. М.: Наука, Гл. ред. физ.-мат. лит., 1988. 288 p.
2. Dicke R.H. Coherence in Spontaneous Radiation Processes // *Phys. Rev. American Physical Society*, 1954. Vol. 93, № 1. P. 99–110.
3. Kuś M., Wódkiewicz K. Two-atom resonance fluorescence // *Phys Rev A*. 1981. Vol. 23, № 2. P. 853–857.
4. Agarwal G.S., Saxena R., Narducci L. M., Feng D. H., and Gilmore R. Analytical solution for the spectrum of resonance fluorescence of a cooperative system of two atoms and the existence of additional sidebands // *Phys Rev A*. 1980. Vol. 21, № 1. P. 257–259.
5. Richter Th. Cooperative Resonance Fluorescence from Two Atoms Experiencing Different Driving Fields // *Optica Acta: International Journal of Optics*. 1983. Vol. 30, № 12. P. 1769–1780.
6. Rudolph T.G., Ficek Z., Dalton B.J. Two-atom resonance fluorescence in running- and standing-wave laser fields // *Phys Rev A. American Physical Society*, 1995. Vol. 52, № 1. P. 636–656.
7. Hettich C., Schmitt C., Zitzmann J., Kühn S., Gerhardt I., Sandoghdar V. Nanometer resolution and coherent optical dipole coupling of two individual molecules. // *Science. American Association for the Advancement of Science*, 2002. Vol. 298, № 5592. P. 385–389.
8. Trebbia J.-B., Deplano Q., Tamarat P., Lounis B. Tailoring the superradiant and subradiant nature of two coherently coupled quantum emitters // *Nat Commun*. 2022. Vol. 13, № 1. P. 2962.
9. Ficek Z., Tanas R., Kielich S. Analytical solutions for light absorption spectra of two driven atoms // *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*. 1984. Vol. 17, № 8. P. 1491–1501.

10. Agarwal G.S., Saxena R., Narducci L. M., Feng D. H., and Gilmore R. Analytical solution for the spectrum of resonance fluorescence of a cooperative system of two atoms and the existence of additional sidebands // *Phys Rev A*. 1980. Vol. 21, № 1. P. 257–259.
11. Андреев А.В. Оптическое сверхизлучение: новые идеи и новые эксперименты // *Успехи физических наук*. 1990. Vol. 160, № 12. P. 1.
12. Andreev A. v, Polevoi P. v. Superradiance of two-component quasidegenerate media // *Quantum Elec (Woodbury)*. 1996. Vol. 26, № 7. P. 631–635.
13. Andreev A.V., Sheetlin S.L. Superradiance and Raman scattering in three-level molecular system // *Infrared Phys Technol*. 1996. Vol. 37, № 7. P. 733–739.
14. Fofanov Y.A., Sokolov I. M., Kaiser R., Guerin W. Subradiance in dilute atomic ensembles: Role of pairs and multiple scattering // *Phys Rev A*. 2021. Vol. 104, № 2. P. 023705.
15. Weiss P., Cipris A., Kaiser R., Sokolov I. M., Guerin W. Superradiance as single scattering embedded in an effective medium // *Phys Rev A*. 2021. Vol. 103, № 2. P. 023702.
16. Sokolov I.M. Subradiance of Cold and Dilute Atomic Ensembles Excited by Resonant Pulsed Radiation // *Journal of Experimental and Theoretical Physics*. 2021. Vol. 132, № 1. P. 56–62.
17. Kuraptsev A.S., Sokolov I.M. Spontaneous decay of an atom excited in a dense and disordered atomic ensemble: Quantum microscopic approach // *Phys Rev A*. 2014. Vol. 90, № 1. P. 012511.
18. Walther A., Amari A., Kröll S., Kalachev A. Experimental superradiance and slow-light effects for quantum memories // *Phys Rev A*. 2009. Vol. 80, № 1. P. 012317.
19. Basché Th., Moerner W. E., Orrit M., Talon H. Photon antibunching in the fluorescence of a single dye molecule trapped in a solid // *Phys Rev Lett*. 1992. Vol. 69, № 10. P. 1516–1519.
20. Piliarik M., Sandoghdar V. Direct optical sensing of single unlabelled proteins and super-resolution imaging of their binding sites // *Nat Commun*. 2014. Vol. 5, № 1. P. 4495.

21. Nirmal M., Dabbousi B. O., Bawendi M.G., Macklin J. J., Trautman J.K., Harris T., Brus L.E. Fluorescence intermittency in single cadmium selenide nanocrystals // *Nature*. 1996. Vol. 383, № 6603. P. 802–804.
22. Eichhammer E., Utikal T., Götzinger S., Sandoghdar V. Spectroscopic detection of single Pr³⁺ ions on the $^3H_4 - ^1D_2$ transition // *New J Phys*. 2015. Vol. 17, № 8. P. 083018.
23. Naumov A. V. Low-temperature spectroscopy of organic molecules in solid matrices: from the Shpol'skii effect to laser luminescent spectromicroscopy for all effectively emitting single molecules // *Physics-Uspekhi*. 2013. Vol. 56, № 6. P. 605–622.
24. Eremchev I.Yu. et al. Luminescence Microscopy of Single Quantum Dot Pairs with Nanometer Spatial Resolution // *JETP Lett*. 2018. Vol. 108, № 1. P. 30–37.
25. Еремчев И.Ю., Лозинг Н.А., Гладуш М.Г., Баев А.А., Роженцов А.А., Наумов А.В.. К вопросу об измеряемых флуктуациях интенсивности люминесценции одиночных точечных излучателей: артефакты обработки микроскопических изображений // *Известия Российской академии наук. Серия физическая*. 2018. Vol. 82, № 11. P. 1624–1628.
26. Еремчев И.Ю., Лозинг Н.А., Баев А.А., Тарасевич А.О., Гладуш М.Г., Роженцов А.А., Наумов А.В.. Люминесцентная микроскопия одиночных пар квантовых точек с нанометровым пространственным разрешением // *Письма в ЖЭТФ*. 2018. Vol. 108, № 1–2. P. 26–34.
27. Sauter Th. et al. Observation of Quantum Jumps // *Phys Rev Lett*. 1986. Vol. 57, № 14. P. 1696–1698.
28. Brewer R.G., DeVoe R.G., Kallenbach R. Planar ion microtraps // *Phys Rev A*. 1992. Vol. 46, № 11. P. R6781–R6784.
29. van Loo A.F. et al. Photon-Mediated Interactions Between Distant Artificial Atoms // *Science (1979)*. 2013. Vol. 342, № 6165. P. 1494–1496.
30. Ropp C. et al. Manipulating Quantum Dots to Nanometer Precision by Control of Flow // *Nano Lett*. 2010. Vol. 10, № 7. P. 2525–2530.

31. Ficek Z., Tanaś R. Entangled states and collective nonclassical effects in two-atom systems // *Phys Rep.* 2002. Vol. 372, № 5. P. 369–443.
32. Milonni P.W., Knight P.L. Retarded interaction of two nonidentical atoms // *Phys Rev A.* 1975. Vol. 11, № 3. P. 1090–1092.
33. Ficek Z., Tanaś R., Kielich S. Quantum beats and superradiant effects in the spontaneous emission from two nonidentical atoms // *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications.* 1987. Vol. 146, № 3. P. 452–482.
34. Leslie Allen, J. H. Eberly. *Optical resonance and two-level atoms* // Dover books on physics and chemistry. 1987.
35. Lehmberg R.H. Radiation from an N -Atom System. I. General Formalism // *Phys Rev A.* American Physical Society, 1970. Vol. 2, № 3. P. 883–888.
36. Agarwal G.S. *Quantum statistical theories of spontaneous emission and their relation to other approaches.* Springer, Berlin, Heidelberg, 1974. P. 1–128.
37. Richter T. Power Broadening and Two-photon Correlations in Two-atom Resonance Fluorescence // *Optica Acta: International Journal of Optics.* Taylor & Francis, 1982. Vol. 29, № 3. P. 265–273.
38. Bowden C.M., Sung C.C. First- and second-order phase transitions in the Dicke model: Relation to optical bistability // *Phys Rev A.* 1979. Vol. 19, № 6. P. 2392–2401.
39. Hopf F.A., Bowden C.M., Louisell W.H. Mirrorless optical bistability with the use of the local-field correction // *Phys Rev A.* 1984. Vol. 29, № 5. P. 2591–2596.
40. Ben-Aryeh Y., Bowden C. Intrinsic optical bistability in collections of spatially distributed two-level atoms // *Phys Rev A.* 1986. Vol. 34, № 5. P. 3917–3926.
41. Friedberg R., Hartmann S.R., Manassah J.T. Effect of local-field correction on a strongly pumped resonance // *Phys. Rev. A.* American Physical Society, 1989. Vol. 40, № 5. P. 2446–2451.
42. Gladush M.G., Kuznetsov D. v., Roerich V.K. Emission spectra and intrinsic optical bistability in a two-level medium // *European Physical Journal D.* 2011. Vol. 64, № 2–3. P. 511–520.

43. Naumov A. v. et al. Micro-Refractometry and Local-Field Mapping with Single Molecules // *Nano Lett.* 2018. Vol. 18, № 10. P. 6129–6134.
44. Pastori L., Heyl M., Budich J.C. Disentangling sources of quantum entanglement in quench dynamics // *Phys Rev Res.* 2019. Vol. 1, № 1. P. 012007.
45. Pezzè L. et al. Quantum metrology with nonclassical states of atomic ensembles // *Rev Mod Phys.* 2018. Vol. 90, № 3. P. 035005.
46. Streltsov A., Adesso G., Plenio M.B. *Colloquium*: Quantum coherence as a resource // *Rev Mod Phys.* 2017. Vol. 89, № 4. P. 041003.
47. Kornovan D.F. et al. Extremely subradiant states in a periodic one-dimensional atomic array // *Phys Rev A.* 2019. Vol. 100, № 6. P. 063832.
48. Berezhnoi A.D., Zakirov A.I., Kalachev A.A. Quantum memory based on SiV-centers in nanodiamonds // *Laser Phys Lett.* 2022. Vol. 19, № 12. P. 125206.
49. Kalachev A. Quantum storage on subradiant states in an extended atomic ensemble // *Phys Rev A.* 2007. Vol. 76, № 4. P. 043812.
50. Kalachev A., Kröll S. Coherent control of collective spontaneous emission in an extended atomic ensemble and quantum storage // *Phys Rev A.* 2006. Vol. 74, № 2. P. 023814.
51. Nick Vamivakas A. et al. Spin-resolved quantum-dot resonance fluorescence // *Nat Phys.* 2009. Vol. 5, № 3. P. 198–202.
52. Flagg E.B. et al. Resonantly driven coherent oscillations in a solid-state quantum emitter // *Nat Phys.* 2009. Vol. 5, № 3. P. 203–207.
53. Ates S. et al. Post-Selected Indistinguishable Photons from the Resonance Fluorescence of a Single Quantum Dot in a Microcavity // *Phys Rev Lett.* 2009. Vol. 103, № 16. P. 167402.
54. Gu Y. et al. Resonance fluorescence of single molecules assisted by a plasmonic structure // *Phys Rev B.* 2010. Vol. 81, № 19. P. 193103.
55. Astafiev O. et al. Resonance Fluorescence of a Single Artificial Atom // *Science* (1979). 2010. Vol. 327, № 5967. P. 840–843.
56. A.V. Andreev, V.I. Emelyanov, Yu. A. Ilinskii. *Cooperative Effects in Optics.* London: Malvern Physics Series, IOP Publishing, 1993.

57. Benedict M.G. et al. Super-radiance / ed. Benedict M.G. CRC Press, 2018.
58. Kilin S.J. Cooperative resonance fluorescence and atomic interactions // Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics. 1980. Vol. 13, № 13. P. 2653–2658.
59. Agarwal G.S. et al. Collective atomic effects in resonance fluorescence // Phys Rev A. 1977. Vol. 15, № 4. P. 1613–1624.
60. Senitzky I.R. Sidebands in Strong-Field Resonance Fluorescence // Phys Rev Lett. 1978. Vol. 40, № 20. P. 1334–1337.
61. Lorentz H.A. Ueber die Beziehung zwischen der Fortpflanzungsgeschwindigkeit des Lichtes und der Körperdichte // Annalen der Physik und Chemie. 1880. Vol. 245, № 4. P. 641–665.
62. Борн М., Вольф Э. Основы оптики. Наука, 1973.
63. Hopf F.A., Bowden C.M., Louisell W.H. Mirrorless optical bistability with the use of the local-field correction // Phys Rev A. 1984. Vol. 29, № 5. P. 2591–2596.
64. Ben-Aryeh Y., Bowden C.M., Englund J.C. Intrinsic optical bistability in collections of spatially distributed two-level atoms // Phys Rev A. 1986. Vol. 34, № 5. P. 3917–3926.
65. Benedict M.G. et al. Reflection and transmission of ultrashort light pulses through a thin resonant medium: Local-field effects // Phys. Rev. A. American Physical Society, 1991. Vol. 43, № 7. P. 3845–3853.
66. Hehlen M.P. et al. Cooperative optical bistability in the dimer system Cs₃Y₂Br₉:10% Yb³⁺ // J Chem Phys. 1996. Vol. 104, № 4. P. 1232–1244.
67. Hehlen M.P. et al. Cooperative Bistability in Dense, Excited Atomic Systems // Phys Rev Lett. 1994. Vol. 73, № 8. P. 1103–1106.
68. Crenshaw M.E., Bowden C.M. Local-field effects in a dense collection of two-level atoms embedded in a dielectric medium: Intrinsic optical bistability enhancement and local cooperative effects // Phys Rev A. 1996. Vol. 53, № 2. P. 1139–1142.
69. Berman P.R., Milonni P.W. Microscopic Theory of Modified Spontaneous Emission in a Dielectric // Phys Rev Lett. 2004. Vol. 92, № 5. P. 053601.

70. Crenshaw M.E., Bowden C.M. Quantum optics of two-level atoms in a dielectric: comparison of macroscopic and microscopic quantizations of the dielectric // *Opt Commun.* 2002. Vol. 203, № 1–2. P. 115–124.
71. Bonitz M. *Quantum Kinetic Theory* // *Quantum Kinetic Theory*. 2nd ed. Springer International Publishing, 2016.
72. Пантелеев А.А., Рерих В.К., Старостин А.Н. Нестационарное рассеяние резонансного излучения в двухуровневой среде // *ЖЭТФ*. 2003. Vol. 123, № 2. P. 255.
73. Ахиезер А. И., Пелетминский С. В. *Методы статистической физики*. М.: Наука, 1977. 366 p.
74. И.А. Квасников. *Статистическая физика*. Москва: Едиторал УРСС, 2002, 2–3.
75. Roerich V., Starostin A., Panteleev A. Many-body approaches to time-dependent resonance fluorescence // *Progress in Nonequilibrium Green's Functions II*. WORLD SCIENTIFIC, 2003. P. 103–111.
76. Panteleev A.A., Roerich V.I., Starostin A.N. Transient scattering of resonance radiation in a two-level system // *Journal of Experimental and Theoretical Physics*. 2003. Vol. 96, № 2. P. 222–240.
77. Neuhauser W. et al. Localized visible Ba⁺ mono-ion oscillator // *Phys Rev A*. 1980. Vol. 22, № 3. P. 1137–1140.
78. Nagourney W., Sandberg J., Dehmelt H. Shelved optical electron amplifier: Observation of quantum jumps // *Phys Rev Lett*. 1986. Vol. 56, № 26. P. 2797–2799.
79. Itano W.M., Bergquist J.C., Wineland D.J. Laser Spectroscopy of Trapped Atomic Ions // *Science* (1979). 1987. Vol. 237, № 4815. P. 612–617.
80. Varada G. V., Agarwal G.S. Two-photon resonance induced by the dipole-dipole interaction // *Phys Rev A*. 1992. Vol. 45, № 9. P. 6721–6729.
81. Akram U., Ficek Z., Swain S. Decoherence and coherent population transfer between two coupled systems // *Phys Rev A*. 2000. Vol. 62, № 1. P. 013413.
82. Смирнова Е.А., Лозинг Н.А., Гладуш М.Г., Наумов А.В. Спектры поглощения пробного сигнала и резонансной флуоресценции для излучателей при их

- взаимодействии с локальным окружением в прозрачных средах // Оптика и спектроскопия. 2022. Vol. 130, № 1. P. 151.
83. Naumov A.V., Gorshchev A.A., Vainer Y.G., Kador L., Köhler J. Far-Field Nanodiagnostics of Solids with Visible Light by Spectrally Selective Imaging // *Angewandte Chemie International Edition*. 2009. Vol. 48, № 51. P. 9747–9750.
 84. Аллен Л., Эберли Дж. Оптический резонанс и двухуровневые атомы. М.: Мир, 1978. 222 p.
 85. Mandel L., Wolf E. Optical Coherence and Quantum Optics // *American Journal of Physics*. 1995. 1192 p.
 86. Szöke A. et al. Bistable optical element and its applications // *Appl Phys Lett*. 1969. Vol. 15, № 11. P. 376–379.
 87. Gibbs H.M., McCall S.L., Venkatesan T.N.C. Differential gain and bistability using a sodium-filled fabry-perot interferometer // *Phys Rev Lett*. 1976. Vol. 36, № 19. P. 1135–1138.
 88. Hopf F.A., Bowden C.M., Louisell W.H. Mirrorless optical bistability with the use of the local-field correction // *Phys Rev A*. 1984. Vol. 29, № 5. P. 2591–2596.
 89. Guillot-Noël O., Goldner Ph., Gourier D. Dynamics of intrinsic optical bistability in two weakly interacting quantum systems // *Phys. Rev. A. American Physical Society*, 2002. Vol. 66, № 6. P. 63813.
 90. Goldner Ph. et al. Light-induced absorption switching in a Nd³⁺:GdFe₃(BO₃)₄ single crystal // *Phys. Rev. B. American Physical Society*, 2007. Vol. 76, № 16. P. 165102.
 91. Gamelin D.R., Lüthi S.R., Güdel H.U. The Role of Laser Heating in the Intrinsic Optical Bistability of Yb³⁺-Doped Bromide Lattices // *J Phys Chem B*. 2000. Vol. 104, № 47. P. 11045–11057.
 92. Klugkist J.A., Malyshev V.A., Knoester J. Intrinsic optical bistability of thin films of linear molecular aggregates: The one-exciton approximation // *J Chem Phys*. 2007. Vol. 127, № 16. P. 164705.
 93. Kuznetsov D. V., Roerich V.K., Gladush M.G. Using BBGKY hierarchies to study the effect of the local field on the rate of radiative relaxation of quantum systems in

- a dielectric medium // Theoretical and Mathematical Physics. 2011. Vol. 168, № 2. P. 1078–1095.
94. Kuznetsov D. v., Roerich Vl.K., Gladush M.G. Local field and radiative relaxation rate in a dielectric medium // Journal of Experimental and Theoretical Physics. 2011. Vol. 113, № 4. P. 647–658.
95. Л. Ландау, Е. Лифшиц. Теоретическая физика. Том I. Механика. ФИЗМАТЛИТ, 2001.
96. Lozing N.A. Gladush M.G., Eremchev I.Yu, Ekimov E.A., Naumov A.V. Stochastic superflares of photoluminescence from a single microdiamond with germanium-vacancy color centers: A general phenomenon or a unique observation // Phys Rev B. 2020. Vol. 102, № 6. P. 060301.
97. Vlasov R.A., Lemeza A.M., Gladush M.G. Dynamical instabilities of spectroscopic transitions in dense resonant media // Laser Phys Lett. 2013. Vol. 10, № 4.

Приложения

Приложение А. Управляющее уравнение

Интеграл по времени во второй сумме в (2.11) вычислим как одностороннее преобразование Фурье функции Грина:

$$\int_0^t dt' \vec{\mathbf{G}}^\pm(\mathbf{r}, t - t') e^{i\omega(t-t')} = \vec{\mathbf{G}}^\pm(\mathbf{r}, \omega). \quad (\text{A.1})$$

Здесь $\vec{\mathbf{G}}^\pm(\mathbf{r}, \omega)$ опережающий и запаздывающий тензор Грина в частотном представлении. Для него выполняются следующие соотношения:

$$\vec{\mathbf{G}}^-(\mathbf{r}, \omega) = 0 \quad \vec{\mathbf{G}}^+(\mathbf{r}, -\omega) = 0$$

$$\vec{\mathbf{G}}^+(\mathbf{r}, \omega) = \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \omega)$$

$$\vec{\mathbf{G}}^-(\mathbf{r}, -\omega) = \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, -\omega) = \vec{\mathbf{G}}^*(\mathbf{r}, \omega)$$

После интегрирования эта сумма состоит из слагаемых, обозначаемые Z_{ij} , которые принимают следующий вид:

$$Z_{ij} = D_{ij}[\hat{\sigma}_i^+, \hat{\sigma}_j^- \rho_{\{a\}}] + D_{ij}^*[\hat{\sigma}_i^-, \rho_{\{a\}} \hat{\sigma}_j^+]$$

где

$$D_{ij} = \frac{1}{\hbar} \mathbf{d}_i^* \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j, \omega_0) \mathbf{d}_j$$

Здесь, $\omega_0 = (\omega_1 + \omega_2)/2$ средняя частота излучателей, а индексы $i, j = \{1, 2\}$ нумеруют излучатели.

Мнимая часть Z_{ij} отвечает за релаксацию матрицы плотности:

$$\text{Im}(Z_{ij}) = \gamma_{ij}([\hat{\sigma}_i^+, \hat{\sigma}_j^- \rho_{\{a\}}] + [\rho_{\{a\}} \hat{\sigma}_j^+, \hat{\sigma}_i^-]) \quad (\text{A.2})$$

где $\gamma_{ij} = \text{Im}(D_{ij})$. Далее можно положить $\mathbf{d}_i^* = \mathbf{d}_i$ во всех последующих выкладках, тогда получаем:

$$\gamma_{ij} = \frac{1}{\hbar} \mathbf{d}_i \text{Im} \left(\vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j, \omega_0) \right) \mathbf{d}_j \quad (\text{A. 3})$$

Если $i = j$, тогда $\gamma_{ii} = \gamma_i = 2|\mathbf{d}_i|^2 \omega_i^3 / (3\hbar c^3)$ - скорость релаксации одиночных излучателей; для $i \neq j$, значение γ_{ij} определяет скорость коллективного распада.

Действительная часть Z_{ij} дает радиационные сдвиги для $i = j$, которые относятся к переходам отдельных эмиттеров, в то время как для $i \neq j$ мы получаем сдвиги уровней энергии коллективного ансамбля:

$$\text{Re}(Z_{ij}) = \Omega_{ij} [\hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^-, \rho_{\{a\}}] \quad (\text{A. 4})$$

где

$$\Omega_{ij} = \text{Re}(D_{ij}) = \frac{1}{\hbar} \mathbf{d}_i \text{Re} \left(\vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j, \omega_0) \right) \mathbf{d}_j$$

есть индивидуальный радиационный сдвиг для $i = j$ и параметр диполь-дипольного взаимодействия для $i \neq j$. На данном мы не будем учитывать отдельные радиационные сдвиги. Учет этих слагаемых приводит к небольшим изменениям частот переходов ($\omega_i \rightarrow \omega_i + \Omega_{ii}$). Можно полагать, что эти сдвиги могут быть включены в Δ_i .

Приложение Б. Уравнение для поля $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$

Для того чтобы вывести уравнение для поля $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ необходимо подействовать оператором $\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t)$ на формальное решение для однофотонной матрицы плотности ρ_f и, взяв след, необходимо просуммировать по всем модам согласно определению (1.11). Формальное решение уравнения (2.8):

$$\begin{aligned} \rho_f(t) = & \rho_f^0 - \frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' \left[\sum_i \langle V_{if}(t') \rangle_i, \rho_f(t') \right] \\ & - \frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' \text{Tr}_{\{a\}} \left[\sum_i V_{if}(t'), g_{\{a\}f}(t') \right] \end{aligned} \quad (\text{Б. 1})$$

Так как $\langle V_{if} \rangle_i = -\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{d}_i)_i$ есть фотонный оператор, то выполняется следующее коммутационное соотношение:

$$\text{Tr}_f([\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t), \langle V_{if}(t') \rangle_i] \rho_f(t')) = -[\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t), \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}_i, t')] \langle \hat{\mathbf{d}}_i(t') \rangle_i$$

Тогда можно получить:

$$\int_0^t dt' \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - t') \langle \hat{\mathbf{d}}_i(t') \rangle_i$$

Последнее слагаемое в правой части (Б. 1) не дает вклада в среднее поле, так как:

$$\begin{aligned} & \sum_f \text{Tr}_f(\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \text{Tr}_{\{a\}}[V_{if}(t'), g_{\{a\}f}(t')]) \\ & = \sum_f [\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t), \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}_i, t')] \text{Tr}_{\{a\}f}(g_{\{a\}f}(t') \mathbf{d}_i(t')) = 0 \end{aligned}$$

Приложение В. Уравнение для оператора $\Phi(\mathbf{r}, t)$

Для вывода уравнения для поля $\Phi(\mathbf{r}, t)$ необходимо подействовать оператором $\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t)$ на формальное решение для корреляционной матрицы $g_{\{a\}f}$ (8):

$$\begin{aligned} g_{\{a\}f}(t) = & -\frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' \left(\left[\sum_i \bar{V}_{if}(t'), \rho_{\{a\}}(t') \rho_f(t') \right] \right) \\ & - \frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' \left(\left[\sum_{i,f} \langle V_{if}(t') \rangle_f + \sum_i \langle V_{if}(t') \rangle_i, g_{\{a\}f}(t') \right] \right) \\ & - \frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' \left(\sum_{i, f' \neq f} Tr_{f'} [V_{if'}(t'), \rho_{\{a\}}(t') g_{ff'}(t')] \right) \end{aligned}$$

Затем, взяв след, необходимо просуммировать по всем модам согласно определению.

Оператор взаимодействия имеет вид $\bar{V}_{if} = V_{if} - \langle V_{if} \rangle_i - \langle V_{if} \rangle_f$, тогда под первым интегралом коммутатор дает:

$$\begin{aligned} & \sum_f Tr_f \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) [V_{if}(t'), \rho_{\{a\}}(t') \rho_f(t')] \\ & = - \sum_f \langle \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \otimes \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}_i, t') \rangle_f [\mathbf{d}_i(t'), \rho_{\{a\}}(t')] \\ & \quad + \rho_{\{a\}}(t') \mathbf{d}_i(t') \mathbf{G}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - t') \\ & - \sum_f Tr_f \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) [\langle V_{if}(t') \rangle_i, \rho_{\{a\}}(t') \rho_f(t')] = \langle \mathbf{d}_i(t') \rangle_i \rho_{\{a\}}(t') \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - t') \\ & - \sum_f Tr_f \mathbf{E}_f(\mathbf{r}, t) [\langle V_{if}(t') \rangle_f, \rho_{\{a\}}(t') \rho_f(t')] \\ & = \sum_f \langle \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \rangle_f \otimes \langle \mathbf{E}_f(\mathbf{r}_i, t') \rangle_f [\mathbf{d}_i(t'), \rho_{\{a\}}(t')] \end{aligned}$$

Первые два слагаемых под вторым интегралом дают:

$$\sum_{i,f} Tr_f \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) [\langle V_{if}(t') \rangle_f, g_{\{a\}f}(t')] = \sum_{i,f} [\langle \hat{\mathbf{E}}_f \rangle_f(\mathbf{r}_i, t') \mathbf{d}_i(t'), \Phi(\mathbf{r}, t')]]$$

Последние два слагаемых в этом интеграле равны нулю, так как:

$$\begin{aligned} \sum_f Tr_f \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) [\langle V_{if}(t') \rangle_i, g_{\{a\}f}(t')] &= \langle d_i \rangle_i(t') \sum_f [\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t), \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}_i, t')] Tr_f g_{\{a\}f}(t') \\ &= 0 \end{aligned}$$

Последний коммутатор определяет часть тензора $\vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t')$:

$$\begin{aligned} \sum_{i, f, f' \neq f} Tr_f \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) Tr_{f'} [V_{if'}(t'), \rho_{\{a\}}(t') g_{ff'}(t')] \\ = - \sum_{f, f' \neq f} Tr_{ff'} (\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \otimes \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}_i, t') g_{ff'}(t')) [\mathbf{d}_i(t'), \rho_{\{a\}}(t')] \end{aligned}$$

Приложение Г. Тензор корреляции $\overleftrightarrow{\mathbf{W}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t')$

Тензор корреляции определяется следующим образом

$$\begin{aligned} \overleftrightarrow{\mathbf{W}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t') &= \sum_f \left(Tr_f(\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \otimes \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}', t') \rho_f(t')) - Tr_f(\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \rho_f(t')) \right. \\ &\quad \left. \otimes Tr_f(\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}', t') \rho_f(t')) + \sum_{f' \neq f} Tr_{ff'}(\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \otimes \hat{\mathbf{E}}_{f'}(\mathbf{r}', t') g_{ff'}(t')) \right) \end{aligned}$$

Воспользуемся формальным решением для фотонной матрицы плотности (А.1).

Рассмотрим первое слагаемое для одной моды f . Подставив формальное решение для $\rho_f(t')$, получим:

$$\begin{aligned} Tr_f(\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \otimes \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}', t') \rho_f(t')) &= -\frac{i}{\hbar} \sum_i \int_0^{t'} d\tau Tr_f \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \otimes \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}', t') [\langle \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \rangle_i \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}_i, \tau), \rho_f(\tau)] \\ &\quad - \frac{i}{\hbar} \sum_i \int_0^{t'} d\tau Tr_f \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \otimes \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}', t') Tr_{\{a\}} [\hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}_i, \tau), g_{\{a\}f}(\tau)] \end{aligned}$$

Рассмотрим выражение под первым интегралом:

$$\begin{aligned} Tr_f \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \otimes \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}', t') [\langle \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \rangle_i \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}_i, \tau), \rho_f(\tau)] &= \overleftrightarrow{\mathbf{G}}_f(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau) \langle \mathbf{d}_i(\tau) \rangle_i \otimes Tr_f(\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}', t') \rho_f(t')) \end{aligned}$$

Просуммировав по всем модам и взяв интеграл, получим в точности второе слагаемое из (2.14), и, так как их знаки противоположны, эти слагаемые уничтожаются.

Рассмотрим подробнее выражение под вторым интегралом:

$$\begin{aligned}
Tr_f \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \otimes \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}', t') Tr_{\{a\}} [\hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}_i, \tau), g_{\{a\}f}(\tau)] = \\
= Tr_{\{a\}f} \{ \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \otimes \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}', t') \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}_i, \tau) \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) g_{\{a\}f}(\tau) - \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}_i, \tau) \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \\
\otimes \hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}', t') \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) g_{\{a\}f}(\tau) \} \\
= Tr_{\{a\}} \{ \hat{\Phi}_f(\mathbf{r}, t, \tau) \otimes \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \vec{\mathbf{G}}_f(\mathbf{r}' - \mathbf{r}_i, t' - \tau) + \vec{\mathbf{G}}_f(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau) \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \\
\otimes \hat{\Phi}_f(\mathbf{r}, t', \tau) \}
\end{aligned}$$

где учтено разложение по модам: $\Phi(\mathbf{r}, t, \tau) = \sum_f \Phi_f(\mathbf{r}, t, \tau)$, $\mathbf{G}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau) = \sum_f \mathbf{G}_f(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau)$.

Наконец, для расчета последнего слагаемого в $\vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t')$ запишем формальное решение для корреляционного оператора $g_{ff'}$:

$$\begin{aligned}
g_{ff'}(t') = \frac{i}{\hbar} \sum_i \int_0^{t'} d\tau [\langle V_{if}(\tau) \rangle_i + \langle V_{if'}(\tau) \rangle_i, g_{ff'}(\tau)] \\
- \frac{i}{\hbar} \sum_i \int_0^{t'} d\tau (Tr_{\{a\}} [V_{if}, \rho_f(\tau) g_{\{a\}f'}(\tau)] + Tr_{\{a\}} [V_{if'}, \rho_{f'}(\tau) g_{\{a\}f}])
\end{aligned}$$

Первый интеграл не вносит вклада, так как:

$$\begin{aligned}
Tr_{ff'} (\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \otimes \hat{\mathbf{E}}_{f'}(\mathbf{r}', t') \langle V_{if}(\tau) \rangle_i g_{ff'}(\tau)) \\
= i\hbar \vec{\mathbf{G}}_f(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau) \langle \mathbf{d}_i(\tau) \rangle_i \otimes Tr_{ff'} (\hat{\mathbf{E}}_{f'}(\mathbf{r}', t') g_{ff'}) = 0
\end{aligned}$$

Из второго интеграла получим:

$$\begin{aligned}
\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) \otimes \hat{\mathbf{E}}_{f'}(\mathbf{r}', t') Tr_{\{a\}} [V_{if}(\tau), \rho_f(\tau) g_{\{a\}f'}(\tau)] \\
= i\hbar \vec{\mathbf{G}}_f(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau) Tr_{\{a\}} (\hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \otimes \Phi_{f'}(\mathbf{r}', t', \tau))
\end{aligned}$$

Тогда выражение для $\vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t')$ примет вид:

$$\begin{aligned}
\vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t') &= \sum_i \int_0^{t'} d\tau \left\{ \sum_f Tr_{\{a\}} \left(\vec{\mathbf{G}}_f(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau) \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \otimes \hat{\Phi}_f(t', \tau) \right) \right. \\
&+ \sum_f Tr_{\{a\}} \hat{\Phi}_f(t, \tau) \otimes \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \vec{\mathbf{G}}_f(\mathbf{r}' - \mathbf{r}_i, t' - \tau) \\
&+ \sum_{f' \neq f} Tr_{\{a\}} \vec{\mathbf{G}}_f(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau) \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \otimes \hat{\Phi}_{f'}(t', \tau) \\
&\left. + \sum_{f' \neq f} Tr_{\{a\}} \hat{\Phi}_f(t, \tau) \otimes \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \vec{\mathbf{G}}_{f'}(\mathbf{r}' - \mathbf{r}_i, t' - \tau) \right\} \\
&= \sum_i \int_0^{t'} d\tau \left\{ \sum_{f, f'} Tr_{\{a\}} \left(\vec{\mathbf{G}}_f(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau) \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \otimes \hat{\Phi}_{f'}(t', \tau) \right) \right. \\
&\left. + \sum_{f, f'} Tr_{\{a\}} \left(\hat{\Phi}_f(t, \tau) \otimes \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \vec{\mathbf{G}}_{f'}(\mathbf{r}' - \mathbf{r}_i, t' - \tau) \right) \right\}
\end{aligned}$$

Просуммировав по всем модам, получим окончательное выражение для тензора корреляции поля:

$$\begin{aligned}
\vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t') &= \sum_i \int_0^{t'} d\tau Tr_{\{a\}} \left(\vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau) \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \otimes \hat{\Phi}(\mathbf{r}', t', \tau) \right) \\
&+ \sum_i \int_0^{t'} d\tau Tr_{\{a\}} \left(\hat{\Phi}(\mathbf{r}, t, \tau) \otimes \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r}' - \mathbf{r}_i, t' - \tau) \right)
\end{aligned}$$

Приложение Д. Полная интенсивность излучения

Рассмотрим формальное решение для функции $\Phi_{\{a\}}(\mathbf{r}, t, \tau) =$

$\sum_f Tr_f (\hat{\mathbf{E}}_f(\mathbf{r}, t) g_{\{a\}F}(\tau)):$

$$\hat{\Phi}(\mathbf{r}, t, \tau) = \sum_i \int_0^\tau dt'' \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - t'') \rho_{\{a\}}(t'') \hat{\mathbf{d}}_i(t'')$$

Выражения для тензора корреляции поля в точке (\mathbf{r}, t) примет вид:

$$\begin{aligned} \vec{\mathbf{W}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}, t, t) &= \int_0^t d\tau \int_0^\tau dt'' Tr_{\{a\}} \left(\left(\vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, t - \tau) \hat{\mathbf{d}}_a(\tau) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_{a'}, t - \tau) \hat{\mathbf{d}}_{a'}(\tau) \right) \otimes \left(\rho_{\{a\}}(t'') \hat{\mathbf{d}}_a(t'') \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, t - t'') \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \rho_{\{a\}}(t'') \hat{\mathbf{d}}_{a'}(t'') \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_{a'}, t - t'') \right) \right) \\ &\quad + \int_0^t d\tau \int_0^\tau dt'' Tr_{\{a\}} \left(\left(\vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, t - t'') \rho_{\{a\}}(t'') \hat{\mathbf{d}}_a(t'') \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_{a'}, t - t'') \rho_{\{a\}}(t'') \hat{\mathbf{d}}_{a'}(t'') \right) \otimes \left(\hat{\mathbf{d}}_a(\tau) \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a, t - \tau) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \hat{\mathbf{d}}_{a'}(\tau) \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_{a'}, t - \tau) \right) \right) \end{aligned}$$

Где мы имеем интегралы вида:

$$\begin{aligned} &\int_0^t d\tau \int_0^\tau dt'' \left(\vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau) \{ Tr_{\{a\}} \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \otimes \rho_{\{a\}}(t'') \hat{\mathbf{d}}_j(t'') \} \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, t - t'') \right) \\ &\int_0^t d\tau \int_0^\tau dt'' \left(\vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, t - t'') \{ Tr_{\{a\}} \hat{\mathbf{d}}_j(t'') \rho_{\{a\}}(t'') \otimes \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \} \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau) \right) \end{aligned}$$

Рассмотрим множители под интегралом и запишем их в приближении вращающейся волны:

$$\begin{aligned}
& Tr_{\{a\}} \left(\hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \otimes \rho_{\{a\}}(t'') \hat{\mathbf{d}}_j(t'') \right) \\
&= Tr_{\{a\}} \left((\mathbf{d}_i \hat{\sigma}_i^- e^{-i\omega_i \tau} + \mathbf{d}_i \hat{\sigma}_i^+ e^{i\omega_i \tau}) \otimes \rho_{\{a\}}(t'') (\mathbf{d}_j \hat{\sigma}_j^- e^{-i\omega_j t''} \right. \\
&\quad \left. + \mathbf{d}_j \hat{\sigma}_j^+ e^{i\omega_j t''}) \right) \\
&= \mathbf{d}_i \otimes \mathbf{d}_j Tr_{\{a\}} (\hat{\sigma}_i^- \rho_{\{a\}}(t'') \hat{\sigma}_j^+) e^{-i\omega_i \tau + i\omega_j t''} \\
&\quad + \mathbf{d}_i \otimes \mathbf{d}_j Tr_{\{a\}} (\hat{\sigma}_i^+ \rho_{\{a\}}(t'') \hat{\sigma}_j^-) e^{i\omega_i \tau - i\omega_j t''} \\
&= \mathbf{d}_i \otimes \mathbf{d}_j Tr_{\{a\}} (\hat{\sigma}_j^+ \hat{\sigma}_i^- \rho_{\{a\}}(t'')) e^{-i\omega_i \tau + i\omega_j t''} + \text{к. с.}
\end{aligned}$$

И аналогично во втором интеграле:

$$\begin{aligned}
& Tr_{\{a\}} \left(\hat{\mathbf{d}}_j(t'') \rho_{\{a\}}(t'') \otimes \hat{\mathbf{d}}_i(\tau) \right) \\
&= Tr_{\{a\}} \left((\mathbf{d}_j \hat{\sigma}_j^- e^{-i\omega_j t''} + \mathbf{d}_j \hat{\sigma}_j^+ e^{i\omega_j t''}) \rho_{\{a\}}(t'') \otimes (\mathbf{d}_i \hat{\sigma}_i^- e^{-i\omega_i \tau} \right. \\
&\quad \left. + \mathbf{d}_i \hat{\sigma}_i^+ e^{i\omega_i \tau}) \right) \\
&= \mathbf{d}_j \otimes \mathbf{d}_i Tr_{\{a\}} (\hat{\sigma}_j^- \rho_{\{a\}}(t'') \hat{\sigma}_i^+) e^{i\omega_j \tau - i\omega_i t''} \\
&\quad + \mathbf{d}_j \otimes \mathbf{d}_i Tr_{\{a\}} (\hat{\sigma}_j^+ \rho_{\{a\}}(t'') \hat{\sigma}_i^-) e^{-i\omega_j \tau + i\omega_i t''} \\
&= \mathbf{d}_j \otimes \mathbf{d}_i^* Tr_{\{a\}} (\hat{\sigma}_j^- \rho_{\{a\}}(t'') \hat{\sigma}_i^+) e^{i\omega_j \tau - i\omega_i t''} + \text{к. с.}
\end{aligned}$$

Тогда, воспользовавшись Марковским приближением, вынесем матрицу плотности из-под интеграла, и двойные интегралы сведутся к двум односторонним преобразованиям Фурье:

$$\begin{aligned}
& \int_0^t d\tau \int_0^\tau dt'' \left(\vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau) \{ Tr_{\{a\}} \mathbf{d}_i(\tau) \otimes \rho_{\{a\}}(t'') \mathbf{d}_j(t'') \} \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, t - t'') \right) \\
&= \int_0^t d\tau \int_0^\tau dt'' \left(\vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t \right. \\
&\quad \left. - \tau) \left\{ \mathbf{d}_i \otimes \mathbf{d}_j Tr_{\{a\}} (\hat{\sigma}_j^+ \hat{\sigma}_i^- \rho_{\{a\}}(t'')) e^{-i\omega_i \tau + i\omega_j t''} + \text{к. с.} \right\} \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, t \right. \\
&\quad \left. - t'') \right)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
&= Tr_{\{a\}} \left(\hat{\sigma}_j^+ \hat{\sigma}_i^- \rho_{\{a\}}(t) \right) \int_0^t d\tau \int_0^\tau dt'' \left(\vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau) e^{i\omega_i(t-\tau)} \mathbf{d}_i \otimes \mathbf{d}_j \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, t \right. \\
&\quad \left. - t'') e^{-i\omega_j(t-t'')} \right) e^{-i(\omega_i - \omega_j)t} + \text{к. с.} \\
&= Tr_{\{a\}} \left(\hat{\sigma}_j^+ \hat{\sigma}_i^- \rho_{\{a\}}(t) \right) \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, \omega_i) \mathbf{d}_i \otimes \mathbf{d}_j \vec{\mathbf{G}}^*(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, \omega_j) e^{-i(\omega_i - \omega_j)t} \\
&\quad + \text{к. с.}
\end{aligned}$$

Аналогично:

$$\begin{aligned}
&\int_0^t d\tau \int_0^\tau dt'' \left(\vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, t - t'') \{ Tr_{\{a\}} \mathbf{d}_j(t'') \rho_{\{a\}}(t'') \otimes \mathbf{d}_i(\tau) \} \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau) \right) \\
&= \int_0^t d\tau \int_0^\tau dt'' \left(\vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, t \right. \\
&\quad \left. - t'') \{ \mathbf{d}_j \otimes \mathbf{d}_i Tr_{\{a\}} \left(\hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^- \rho_{\{a\}}(t'') \right) e^{i\omega_j\tau - i\omega_i t''} + \text{к. с.} \} \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t - \tau) \right) \\
&= Tr_{\{a\}} \left(\hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^- \rho_{\{a\}}(t) \right) \int_0^t d\tau \int_0^\tau dt'' \left(\vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, t - t'') e^{i\omega_j(t-t'')} \mathbf{d}_j \otimes \mathbf{d}_i \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, t \right. \\
&\quad \left. - \tau) e^{-i\omega_i(t-\tau)} \right) e^{-i(\omega_j - \omega_i)t} + \text{к. с.} \\
&= Tr_{\{a\}} \left(\hat{\sigma}_i^+ \hat{\sigma}_j^- \rho_{\{a\}}(t) \right) \vec{\mathbf{G}}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j, \omega_j) \mathbf{d}_j \otimes \mathbf{d}_i \vec{\mathbf{G}}^*(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i, \omega_i) e^{-i(\omega_j - \omega_i)t} \\
&\quad + \text{к. с.}
\end{aligned}$$