

# СУБПУАССОНОВСКАЯ СТАТИСТИКА ФОТОНОВ ФЛУОРЕСЦЕНЦИИ ОДИНОЧНОГО АТОМА, ВОЗБУЖДАЕМОГО НЕПРЕРЫВНЫМ ЛАЗЕРНЫМ СВЕТОМ

*И. С. Осадько\**

*Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук  
119991, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 4 февраля 2005 г.

Изучается распределение фотонов флуоресценции одиночного двухуровневого атома, облучаемого светом непрерывного лазера. Вычисляется функция распределения так называемых промежуточных фотонов флуоресценции такого атома, т. е. фотонов, испущенных на временном интервале, в начале и конце которого атом уже испустил по фотону. Она описывает субпуассоновское, т. е. более узкое, чем пуассоновское, распределение, как и было наблюдено ранее в эксперименте. С помощью этой функции распределения для промежуточных фотонов вычисляется среднее число фотонов флуоресценции, второй факториальный момент фотонов флуоресценции и параметр Манделя, обычно используемый для оценки степени непуассоновости излучения. Теоретические формулы для моментов распределения промежуточных фотонов отличаются от известных формул Манделя для моментов распределения фотонов флуоресценции.

PACS: 42.50.Ar

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Обычно источником света служит ансамбль возбужденных атомов. Свет, испущенными многими атомами, состоит из многих фотонов. Статистика фотонов в световом луче и ее зависимость от способа приготовления светового луча обсуждается в ряде книг [1–5]. Основное внимание в них уделено изучению квантовой структуры поля лазерного излучения, флуктуациям этого поля и когерентности излучения.

Например, излучение тепловых источников света рассматривается Клаудером и Сударшаном [2] как суперпозиция случайных вкладов от большого числа атомов, причем вклад каждого атома меняется во времени и, кроме того, зависит от расположения атома внутри источника. Математически такие световые волны рассматриваются как статистические переменные, иначе говоря, как флуктуирующие поля. В зависимости от особенностей источника флуктуировать могут фаза, амплитуда и частота или все

три величины одновременно. Такой подход, использованный в [2], по словам авторов этой книги «в принципе не отличается от подхода, используемого для рассмотрения тепловых шумов в радиоприемнике».

В связи с развитием лазеров, свет которых когерентен, возник значительный интерес к проблеме когерентности света. Было установлено [1], что классический когерентный свет имеет пуассоновское распределение  $P_n$  числа  $n$  фотонов, т. е. описывается следующей формулой:

$$P_n(\alpha) = \frac{\alpha^{2n}}{n!} \exp(-\alpha^2), \quad (1)$$

где параметр  $\alpha$  пропорционален амплитуде классического электрического поля излучения.

Однако имеется другая сторона проблемы поля излучения, которая практически не затрагивалась в этих книгах. Она касается поля излучения одиночного атома, возбуждаемого светом непрерывного лазера. Испускание света одиночным атомом, непрерывно возбуждаемым светом лазера, является чисто квантовым процессом и не допускает классического подхода, который часто служил отправ-

\*E-mail: osadko@sci.lebedev.ru

ной точкой рассуждений в [1–5]. Поэтому возникает естественный вопрос: какой функцией распределения будет описываться излучение одиночного атома, непрерывно возбуждаемого светом лазера?

Впервые такой вопрос поставил Мандель в работе [6]. При исследовании этого вопроса Мандель использовал следующую формулу для вероятности наблюдения  $n$  фотонов на временном интервале  $T$  [5–8]:

$$N(n, T) = \left\langle T : \frac{1}{n!} \left[ \int_t^{t+T} dx \hat{I}(x) \right]^n \times \exp \left[ - \int_t^{t+T} dx \hat{I}(x) \right] : \right\rangle. \quad (2)$$

Здесь под знаком квантово-статистического усреднения стоит нормально и хронологически упорядоченное произведение операторов интенсивности  $I$ . Используя это выражение для вероятности, получим следующие соотношения для первого и второго факториального момента:

$$\begin{aligned} \langle n(T) \rangle &= \sum_{n=0}^{\infty} n N(n, T) = \\ &= \left\langle : \left[ \int_t^{t+T} dx \hat{I}(x) \right] : \right\rangle = \langle I \rangle T, \quad (3) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \langle n^{(2)}(T) \rangle &= \sum_{n=0}^{\infty} n(n-1) N(n, T) = \\ &= \left\langle T : \left[ \int_t^{t+T} dx \hat{I}(x) \right]^2 : \right\rangle = \\ &= \int_0^T dx \int_0^T dy \langle T : \hat{I}(x) \hat{I}(y) \rangle = \\ &= \langle I \rangle^2 \int_0^T dx \int_0^x dy g^{(2)}(x-y), \quad (4) \end{aligned}$$

где  $g^{(2)}(t)$  — автокорреляционная функция флуоресценции, которая может быть измерена в эксперименте. При выводе соотношений (3) и (4) была использована стационарность, поэтому текущее время заменено на нуль.

Формулы (2)–(4) в равной степени могут быть использованы как для ансамбля атомов, так и для

одиночного атома. Если в эксперименте подсчитывается число случаев  $N_n(T, t)$  испускания  $n$  фотонов флуоресценции на интервале  $T$  при общем времени наблюдения  $t$ , то вероятность такого события определяется следующей формулой:

$$w_n(T) = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{N_n(T, t)}{N_0(T, t) + \sum_{n=1}^{\infty} N_n(T, t)}. \quad (5)$$

Этой измеряемой в эксперименте вероятности может быть поставлена в соответствие теоретическая формула (2). Измеряемая экспериментально вероятность  $w_n(T)$  должна равняться вероятности  $N(n, T)$ , рассчитанной по формуле (2) для данной физической модели.

Расчет вероятности распределения фотонов по формуле (2) для нескольких простейших моделей можно найти в книге [5]. Так, для монохроматического когерентного состояния было найдено, естественно, что распределение фотонов описывается функцией Пуассона; для одномодового лазера со случайной фазой найденное распределение тоже оказалось пуассоновским, а для одномодового фоковского состояния распределение оказалось биномиальным. Для поляризованного луча света от теплового источника было получено распределение Бозе–Эйнштейна.

Как это ни покажется парадоксальным, но расчет вероятности по формуле (2) для одиночного атома представляет собой более сложную задачу, чем для атомного ансамбля, и, по-видимому, по этой причине такой расчет для одиночного атома до сих пор не был проведен. Он был заменен в работе [6] более простой задачей расчета моментов распределения. Используя эти моменты, Мандель предложил оценивать отклонение распределения фотонов от пуассоновского по величине параметра

$$Q(T) = \frac{\langle n^{(2)}(T) \rangle - \langle n(T) \rangle^2}{\langle n(T) \rangle}, \quad (6)$$

где  $\langle n^{(2)}(T) \rangle$  — второй факториальный момент, а  $\langle n(T) \rangle$  — среднее число фотонов на интервале  $T$ . Если использовать формулы (3) и (4), то формула для параметра Манделя принимает следующий вид:

$$Q(T) = \langle I \rangle \left[ \frac{2}{T} \int_0^T dx \int_0^x dy g^{(2)}(y) - T \right]. \quad (7)$$

Эта формула, выражающая параметр Манделя через автокорреляционную функцию, оказалась

очень удобной для практического исследования непуассоновости распределения фотонов и неоднократно использовалась для анализа различных конкретных ситуаций [9–11]. Для пуассоновского распределения параметр Мандела равен нулю. Для более узкого, чем пуассоновское распределение, т. е. субпуассоновского распределения, параметр Мандела отрицателен, а для более широкого распределения (суперпуассоновского) — положителен. Формула (7) обычно используется для оценки непуассоновости распределения фотонов в люминесценции одиночных атомов и молекул.

В настоящей работе для исследования статистики фотонов флуоресценции, испускаемых одиночным атомом, используется подход, который принципиально отличается от подхода, использовавшегося в книгах [1–5]. Если в этих книгах рассматривалось само поле излучения, то в данной статье рассматривается динамика одиночного атома, возбуждаемого светом непрерывного лазера, а о динамике испускания фотонов флуоресценции мы судим по динамике прыжков атома из возбужденного состояния в основное. При таком подходе возможен прямой теоретический расчет вероятностей  $N(n, T)$  с помощью формулы, выведенной ниже. В данной статье проводится как расчет этих вероятностей, так и вычисление с их помощью первых двух моментов этого распределения, а также параметра Мандела для двухуровневого атома, возбуждаемого непрерывным лазерным светом.

## 2. РАЗЛИЧНЫЕ СПОСОБЫ ПОДСЧЕТА ФОТОНОВ ФЛУОРЕСЦЕНЦИИ

Пусть двухуровневый атом облучается непрерывно светом лазера и в случайные моменты времени испускает фотоны флуоресценции. На рис. 1 занумерованы фотоны флуоресценции, испускаемые этим атомом. Формула (2) Мандела соответствует такому способу измерения фотонов, когда вре-

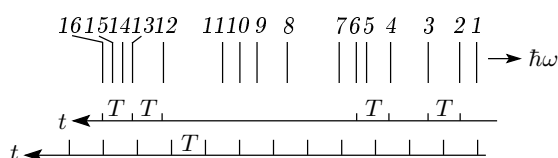


Рис. 1. Последовательность фотонов, испущенных атомом при непрерывном возбуждении светом

менная шкала делится на равные интервалы, как показано на нижней временной шкале рис. 1, и изменяется число фотонов, испущенных на каждом интервале. Теоретическая формула (2) соответствует именно такому способу подсчета фотонов. Начало временного интервала в этом случае никак не определено и никак не связано с временным моментом испускания фотона. Некоторые временные интервалы окажутся вообще без фотонов, что видно на рис. 1.

Однако при исследовании люминесценции одиночного атома возможен другой способ подсчета фотонов флуоресценции. Он привлекателен тем, что для него возможен не только вывод теоретической формулы для функции распределения, которая, как мы увидим, отличается от формулы (2), но и расчет функции распределения фотонов флуоресценции. Рассмотрим этот способ подсчета фотонов.

Пусть в момент времени, принимаемый нами за нуль, был испущен фотон флуоресценции. Этот момент примем за начало интервала. Пусть через временной интервал  $T$  испущен другой фотон. Этот момент мы примем за конец интервала. Следовательно, в этом случае рассматриваются только интервалы длительности  $T$  минимум с двумя фотонами, как показано на верхней временной шкале рис. 1. Возможны два варианта.

В первом варианте между фотоном, открывающим, и фотоном, закрывающим интервал  $T$ , не было испущено фотонов. Таковыми являются интервалы между фотонами 2 и 3, а также 12 и 13 (см. рис. 1). Если мы подсчитываем только такие пары фотонов, то мы измеряем корреляцию фотонов в режиме, который можно назвать режимом старт–стоп или, другими словами, мы измеряем двухфотонный коррелятор старт–стоп. Этот режим был назван в работе [12] режимом последовательно испущенных фотонов.

Однако между двумя фотонами, разделенными заданным интервалом  $T$  может быть испущено какое-то число фотонов, которые мы будем называть промежуточными. Так, например, между фотонами 4 и 6, разделенными интервалом  $T$ , был испущен один промежуточный фотон 5, а между фотонами 13 и 16 было испущено два промежуточных фотона 14 и 15. Если мы подсчитываем все пары фотонов, разделенных интервалом  $T$ , независимо от того, сколько промежуточных фотонов было испущено на интервале  $T$ , то мы измеряем полный двухфотонный коррелятор. Найдем теперь математическое выражение для вероятности обнаружить различное число промежуточных фотонов на интервале  $T$ .

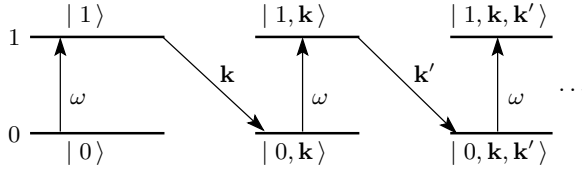


Рис. 2. Переходы между квантовыми состояниями системы «атом + электромагнитное поле»

### 3. КВАНТОВАЯ ДИНАМИКА ДВУХУРОВНЕВОГО АТОМА

При непрерывном возбуждении атома светом происходят переходы между квантовыми состояниями системы «атом + поле», которые схематически изображены на рис. 2. Эта схема показывает, что после поглощения фотона лазерного света с частотой  $\omega$  происходит испускание фотона флуоресценции  $\mathbf{k}$ . При непрерывно работающем лазере накачки процесс превращения лазерных фотонов в фотоны флуоресценции происходит постоянно. Исследование динамики системы в рамках схемы, изображенной на рис. 2, подробно проводилось в работах нескольких групп [13–17]. Независимо друг от друга и разными способами авторами этих работ была выведена следующая система уравнений для элементов матрицы плотности, отвечающей квантовому состоянию с  $N$  фотонами флуоресценции системы «атом + поле»:

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{10}^{(N)} &= -i(\Delta - i/2T_1)\rho_{10}^{(N)} + \chi[\rho_{11}^{(N)} - \rho_{00}^{(N)}], \\ \dot{\rho}_{01}^{(N)} &= \left(\dot{\rho}_{10}^{(N)}\right)^*, \\ \dot{\rho}_{11}^{(N)} &= -\chi[\rho_{10}^{(N)} + \rho_{01}^{(N)}] - \frac{1}{T_1}\rho_{11}^{(N)}, \\ \dot{\rho}_{00}^{(N)} &= \chi[\rho_{10}^{(N)} + \rho_{01}^{(N)}] + \frac{1}{T_1}\rho_{11}^{(N-1)}.\end{aligned}\quad (8)$$

Здесь  $\rho_{ij}^{(N)}$  — элемент матрицы плотности, соответствующий состоянию с  $N$  фотонами, которые выше были названы промежуточными,  $\chi = \mathbf{E} \cdot \mathbf{d}/\hbar$  — частота Раби,  $\Delta$  — разница между частотой лазера и резонансной частотой атома,  $T_1$  — время энергетической релаксации. Хотя эта система и напоминает систему уравнений Блоха, она все же заметно отличается от нее. Система уравнений для  $\rho_{ij}^{(N)}$  не является замкнутой, так как четвертое уравнение содержит функцию  $\rho_{11}^{(N-1)}$ . Система (8) при  $N = 0$ , т. е. в отсутствие промежуточных фотонов, соответствует первой паре состояний на рис. 2, при  $N = 1$  — второй паре состояний и т. д.

Нетрудно убедиться, что четыре матричных элемента

$$\rho_{ij} = \sum_{N=0}^{\infty} \rho_{ij}^{(N)} \quad (9)$$

удовлетворяют уравнениям Блоха с константой фазовой релаксации  $1/T_2 = 1/2T_1$ , т. е. следующим уравнениям:

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{10} &= -i\left(\Delta - \frac{i}{2T_1}\right)\rho_{10} + \chi(\rho_{11} - \rho_{00}), \\ \dot{\rho}_{01} &= i\left(\Delta + \frac{i}{2T_1}\right)\rho_{01} + \chi(\rho_{11} - \rho_{00}), \\ \dot{\rho}_{11} &= -\chi(\rho_{10} + \rho_{01}) - \frac{\rho_{11}}{T_1}, \\ \dot{\rho}_{00} &= \chi(\rho_{10} + \rho_{01}) + \frac{\rho_{11}}{T_1}.\end{aligned}\quad (10)$$

В работах [14, 15] в рамках рассматриваемых процессов превращения лазерных фотонов в фотоны флуоресценции было также рассмотрено и взаимодействие двухуровневого атома с фононами. Было показано, что в этом случае в первых двух уравнениях (10) константа  $1/2T_1$  заменяется на большую константу  $1/T_2$ , величина которой определяется уже электрон-фононным взаимодействием, т. е. мы приходим к уравнениям Блоха с независимыми константами энергетической  $T_1$  и фазовой  $T_2$  релаксации.

Рассмотрим систему уравнений (8) для  $N = 0$ . Учитывая, что  $\rho_{11}^{(-1)} = 0$ , используя обозначения  $\rho_{ij}^{(0)} = W_{ij}$  и совершив преобразование Лапласа, определяемое формулами

$$\begin{aligned}(G(t))_{\omega} &\equiv G(\omega) = \int_0^{\infty} G(t) e^{i(\omega+i0)t} dt, \\ G(t) &= \int_{-\infty}^{\infty} G(\omega) e^{-it\omega} \frac{d\omega}{2\pi} = \begin{cases} 0, & t < 0 \\ G(t), & t > 0 \end{cases},\end{aligned}\quad (11)$$

от системы (8), мы приходим к следующей системе уравнений для лапласовских компонент  $W(\omega)$ :

$$\begin{aligned}\left(i\omega - \frac{1}{T_1} - k\right)W_{11} + kW_{00} &= 0, \\ kW_{11} + (i\omega - k)W_{00} &= -1.\end{aligned}\quad (12)$$

Здесь

$$k(\omega) = i2\chi^2 \frac{\omega + i\Gamma}{(\omega + i\Gamma)^2 - \Delta^2}, \quad (13)$$

где  $\Gamma = 1/T_2 = 1/2T_1$ . С помощью формулы (11)

уравнения Блоха (10) могут быть преобразованы к уравнениям для лапласовских компонент  $\rho(\omega)$  вида

$$\begin{aligned} \left(i\omega - \frac{1}{T_1} - k\right) \rho_{11} + k\rho_{00} &= 0, \\ \left(\frac{1}{T_1} + k\right) \rho_{11} + (i\omega - k)\rho_{00} &= -1. \end{aligned} \quad (14)$$

При выводе уравнений (12) и (14) бралось следующее начальное условие:

$$W_{00}(t = 0) = \rho_{00}(t = 0) = 1.$$

Решая системы (12) и (14), находим

$$\rho_{11}(\omega) = \frac{k}{D_p}, \quad W_{11}(\omega) = \frac{k}{D_s}, \quad (15)$$

при этом соответствующие детерминанты имеют вид

$$D_p = i\omega \left(i\omega - \frac{1}{T_1} - 2k\right), \quad D_s = D_p + \frac{k}{T_1}. \quad (16)$$

С учетом этого получаем выражение, связывающее лапласовские компоненты:

$$\rho_{11}(\omega) = W_{11}(\omega) + \frac{W_{11}(\omega)}{T_1} \rho_{11}(\omega). \quad (17)$$

Принимая во внимание формулу

$$\int_{-\infty}^{\infty} W(\omega) \rho(\omega) e^{-it\omega} \frac{d\omega}{2\pi} = \int_0^t W(t-x) \rho(x) dx, \quad (18)$$

мы легко находим после обратного преобразования Лапласа обеих частей уравнения (17) следующее уравнение:

$$\rho_{11}(t) = W_{11}(t) + \int_0^t \frac{dx}{T_1} W_{11}(t-x) \rho_{11}(x) dx. \quad (19)$$

Решая уравнение (19) методом итераций, представим вероятность  $\rho_{11}(t)$  в виде ряда по числу промежуточных фотонов:

$$\rho_{11}(t) = W_{11}(t) + \sum_{N=1}^{\infty} \rho_{11}^{(N)}(t), \quad (20)$$

где

$$\begin{aligned} \rho_{11}^{(N)}(t) &= \int_0^t \frac{dt_1}{T_1} \int_0^{t_1} \frac{dt_2}{T_1} \dots \int_0^{t_{N-1}} \frac{dt_N}{T_1} W_{11}(t-t_1) \times \\ &\times W_{11}(t_1-t_2) \dots W_{11}(t_{N-1}-t_N) W_{11}(t_N). \end{aligned} \quad (21)$$

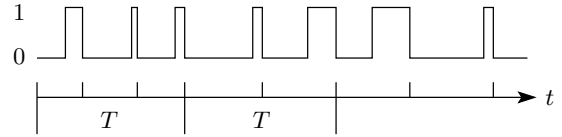


Рис. 3. Временная картина пребывания атома в основном и возбужденном электронных состояниях

Последняя формула имеет простой физический смысл. Чтобы его определить, рассмотрим рис. 3 и примем во внимание, что при переходе с уровня 1 на уровень 0 испускается фотон флуоресценции, а при переходе с уровня 0 на уровень 1 поглощается фотон лазерного света. Поскольку поглощение и испускание фотона происходит в случайный момент времени, рис. 3 дает картину случайных во времени событий, соответствующую схеме на рис. 2. Длина горизонтальных отрезков нижнего и верхнего ряда отмечает время пребывания атома соответственно в основном и возбужденном состояниях. При каждом переходе от верхнего отрезка к нижнему испускается фотон флуоресценции. Эти фотоны изображены вертикальными отрезками на временной шкале. Рисунок 3 напоминает случайный телеграфный сигнал, а число фотонов, испущенных на определенном временном отрезке, равно числу переходов сверху вниз на данном отрезке времени. На рис. 3 помечены два отрезка длительностью  $T$ , содержащих один и два промежуточных фотона. Очевидно, что нижним отрезкам соответствует вероятности

$$\rho_{00}^{(0)}(t), \rho_{00}^{(1)}(t), \rho_{00}^{(2)}(t), \dots,$$

а верхним — вероятности

$$\rho_{11}^{(0)}(t) = W_{11}(t), \rho_{11}^{(1)}(t), \rho_{11}^{(2)}(t), \dots$$

Если мы поделим обе части равенства (20) на  $\rho_{11}(t)$ , то получим следующее соотношение:

$$w_0(t) + \sum_{N=1}^{\infty} w_N(t) = 1, \quad (22)$$

которое может рассматриваться как соотношение для вероятностей, где

$$w_0(t) = \frac{W_{11}(t)}{\rho_{11}(t)} \quad (23)$$

— вероятность обнаружить интервал длительностью  $t$  без промежуточных фотонов, а функция

$$w_N(t) = \frac{1}{\rho_{11}(t)} \times \\ \times \int_0^t \frac{dt_1}{T_1} \int_0^{t_1} \frac{dt_2}{T_1} \dots \int_0^{t_{N-1}} \frac{dt_N}{T_1} W_{11}(t - t_1) \times \\ \times W_{11}(t_1 - t_2) \dots W_{11}(t_{N-1} - t_N) W_{11}(t_N) \quad (24)$$

определяет вероятность обнаружить интервал  $t$  с  $N$  промежуточными фотонами. Формулы (23) и (24) позволяют рассчитать функцию распределения промежуточных фотонов на интервале длительностью  $t$ , начало и конец которого соответствует испусканию фотона.

#### 4. ФУНКЦИЯ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ФОТОНОВ, ИСПУСКАЕМЫХ ДВУХУРОВНЕВЫМ АТОМОМ

Согласно формулам (23) и (24), для вычисления искомых вероятностей необходимо располагать выражением для функций  $W_{11}(t)$  и  $\rho_{11}(t)$ , которые удовлетворяют уравнениям (12) и (14). Эти уравнения не являются балансными уравнениями, так как коэффициент, определяемый формулой (13), зависит от частоты  $\omega$ . Эти уравнения полностью эквивалентны уравнениям (8) при  $N = 1$  и уравнениям Блоха (10), т. е. они учитывают фазовые эффекты, описываемые недиагональными элементами матрицы плотности. Потеря когерентных эффектов происходит, если в формуле (13) полагается  $\omega = 0$ , тогда она приобретает вид

$$k = 2\chi^2 \frac{\Gamma}{\Gamma^2 + \Delta^2}. \quad (25)$$

Формула (25) описывает коэффициент поглощения, а уравнения (11) и (12) с таким значением  $k$  становятся балансными.

Возникает вопрос: насколько правомочен переход от уравнений Блоха к балансным уравнениям? Ответ на него содержит рис. 4. На рис. 4 показано временное поведение решений уравнений Блоха и решений балансных уравнений при различной интенсивности возбуждающего лазера. Осцилляции Раби появляются при большой интенсивности возбуждения, при которой вероятность вынужденных переходов превышает вероятность спонтанных переходов. На рис. 4б видно, что при малой интенсивности возбуждающего света решения уравнений Блоха и балансных уравнений различаются весьма незначительно. Поэтому далее мы будем анализировать статистику фотонов флуоресценции с помощью балансных уравнений, что значительно облегчает анализ.

Решая уравнения (12) и (14) с коэффициентом поглощения, описываемым формулой (25), мы приходим к следующим выражениям:

$$W_{11}(t) = \frac{k}{A - a} [\exp(-at) - \exp(-At)], \quad (26)$$

$$\rho_{11}(t) = \frac{k}{A + a} \{1 - \exp[-(A + a)t]\}, \quad (27)$$

где

$$a = \gamma - R, \quad A = \gamma + R, \\ \gamma = k + 1/2T_1, \quad R = \sqrt{k^2 + (1/2T_1)^2}. \quad (28)$$

При слабой накачке, т. е. когда  $k \ll 1/T_1$ , мы находим, что  $a \approx k$ ,  $A \approx 1/T_1$ . Нетрудно убедиться прямой подстановкой, что функции (26) и (27) удовлетворяют уравнению (19), если в нем  $1/T_1$  заменить на  $A$ .

Согласно формуле (26), вероятность  $W_{11}(t)$  сначала нарастает от нуля на временном интервале порядка  $T_1$ , а потом экспоненциально стремится к нулю по закону

$$W_{11}(t) \propto \exp(-kt). \quad (29)$$

Нетрудно заметить, что если пренебречь нарастанием функции  $W_{11}(t)$  и взять ее в виде (29), то после вычисления вероятностей по формулам (23) и (24) для излучаемых фотонов мы получим распределение Пуассона

$$w_N(t) = \frac{(kt)^N}{N!} \exp(-kt). \quad (30)$$

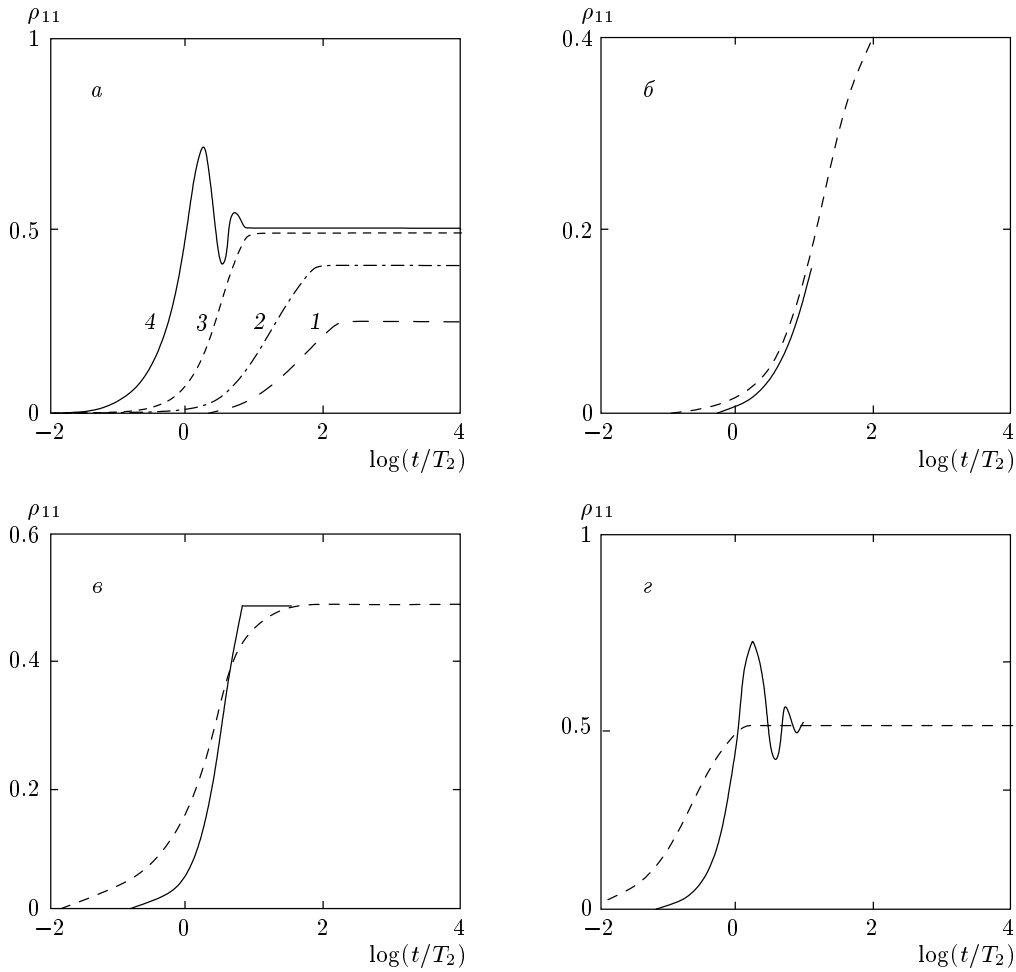
Следовательно, непуассоновость распределения фотонов флуоресценции обусловлена нарастанием от нуля вероятности  $W_{11}(t)$  при временах порядка  $T_1$ . Обращение в нуль вероятности рождения фотона при  $t \rightarrow 0$  называется антигруппировкой фотонов (photon antibunching). Найдем теперь функцию распределения фотонов, не пренебрегая антигруппировкой фотонов.

Совершим преобразование Лапласа обеих частей формулы (24). Воспользовавшись формулой (18), получим следующий результат:

$$(\rho_{11}(t)w_N(t))_\omega = \left(\frac{W_{11}(\omega)}{T_1}\right)^N W_{11}(\omega). \quad (31)$$

Используя формулу (26) для вероятности, найдем выражение для лапласовской компоненты этой вероятности:

$$W_{11}(\omega) = \frac{k}{(i\omega - a)(i\omega - A)}. \quad (32)$$



**Рис. 4.** Зависимость от времени вероятности  $\rho_{11}(t)$  при разной интенсивности возбуждающего лазера (а). Кривые 1, 2, 3 и 4 на рис. 4а соответствуют нарастанию интенсивности в двадцать раз:  $\chi T_2 = 0.05$  (1), 0.1 (2), 0.3 (3), 1 (4). Сравнение решения уравнений Блоха (сплошная линия) с решением балансных уравнений (штриховая линия) приведено для  $\chi T_2 = 0.1$  (б), 0.3 (в), 1 (г)

С помощью формул (28) нетрудно убедиться, что

$$aA = k/T_1.$$

Используя это соотношение, с помощью формулы (32) получим соотношение

$$\frac{W_{11}(\omega)}{T_1} = \frac{aA}{(i\omega - a)(i\omega - A)}. \quad (33)$$

Используя две последние формулы преобразуем формулу (31) к виду

$$(\rho_{11}(t)w_N(t))_\omega = k \frac{a^N}{(i\omega - a)^{N+1}} \frac{A^N}{(i\omega - A)^{N+1}}. \quad (34)$$

Первая дробь, стоящая в правой части этого выражения, является лапласовской компонентой функции

$$\frac{(at)^N}{N!} \exp(-at),$$

т. е. функции Пуассона. Принимая во внимание это обстоятельство и используя формулу (18), мы, совершив обратное преобразование Лапласа в формуле (34), приходим к тому, что искомая вероятность обнаружить  $N$  фотонов на интервале  $t$  пропорциональна свертке двух распределений Пуассона:

$$\begin{aligned} w_N(t) &= \frac{k}{\rho_{11}(t)} \int_0^t dx P_N[(t-x)a] P_N[xA] = \\ &= \frac{k}{\rho_{11}(t)} \int_0^t dx \frac{[(t-x)a]^N}{N!} e^{-(t-x)a} \frac{[xA]^N}{N!} e^{-xA}. \end{aligned} \quad (35)$$

Эта формула эквивалентна формуле (24) для веро-

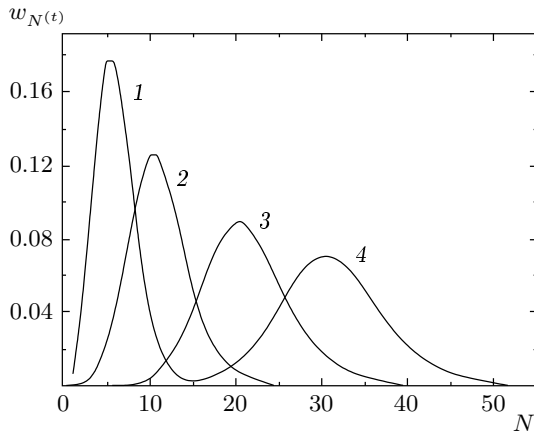


Рис. 5. Функция распределения фотонов для длительности интервала  $T = 5/k$  (1),  $10/k$  (2),  $20/k$  (3),  $30/k$  (4)

ятности обнаружить интервал  $t$  с  $N$  промежуточными фотонами. Однако формула (35) значительно удобнее для практического использования, так как она содержит единственное интегрирование. Расчет по этой формуле функции распределения фотонов дает функцию распределения фотонов, показанную на рис. 5.

Этот рисунок отражает простой факт, что много фотонов мы сможем наблюдать только на интервалах, длительность которых существенно превосходит среднее время  $1/k$  между двумя актами испускания фотонов флуоресценции. Максимум распределения отвечает числу фотонов  $N$ , которое связано с длительностью интервала простым приближенным соотношением  $kT \approx N$ . Такая же связь между временем наблюдения, числом фотонов и интенсивностью возбуждения характерна и для пуассоновского распределения. Чем больше временной интервал, тем больше фотонов мы можем наблюдать. Интересные для эксперимента случаи, когда регистрируется много фотонов, отвечают временным интервалам, значительно превосходящим среднее время  $1/k$  между испущенными фотонами. Это распределение похоже на распределение Пуассона, но все же отличается от него.

Это отличие видно на рис. 6, где проведено сравнение этого распределения и распределения Пуассона. Из этого рисунка следует, что распределение Пуассона при длительности интервала  $T = 27/k$  имеет такую же ширину, как и распределение, описываемое формулой (35) при большей длительности интервала  $T = 30/k$ . При одинаковой длительно-

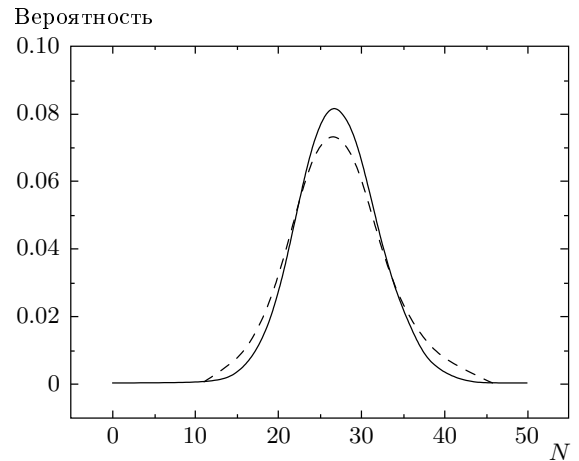


Рис. 6. Распределение фотонов, описываемое функцией (35), для интервала  $T = 30/k$  (сплошная линия) и распределение Пуассона той же ширины, которое соответствует более короткому интервалу  $T = 27/k$  (штриховая линия)

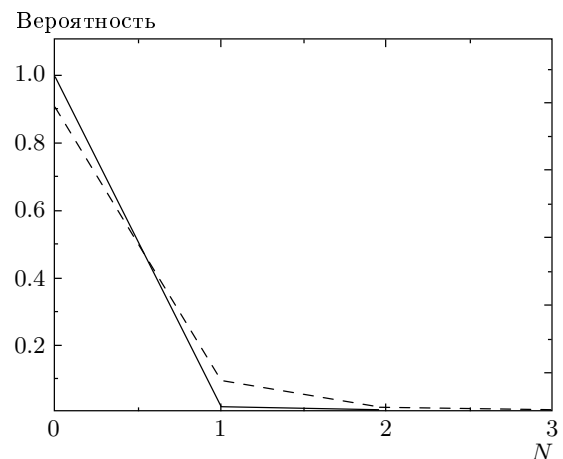


Рис. 7. Субпуассоновское распределение фотонов, рассчитанное по формуле (35) (сплошная линия) и пуассоновское распределение фотонов (штриховая линия) при временном интервале  $T = 1/10k$

сти временного интервала распределение, описываемое формулой (35), будет более узким, чем распределение Пуассона, т. е. оно будет субпуассоновским. Субпуассоновское распределение фотонов флуоресценции одиночных атомов, непрерывно возбуждаемых светом, на коротком интервале  $T < 1/k$  было измерено Шортом и Манделем [18].

В случае  $T < 1/k$  формула (35) и формула Пуассона дают результаты, представленные на рис. 7.



При таком коротком временном отрезке интервалы без фотонов встречаются с вероятностью, почти равной единице, как это и наблюдалось Шортом и Манделем. Временной интервал с одним фотоном встречался в менее чем одном проценте случаев, а вероятность встретить интервал с тремя фотонами составляла менее одной стотысячной процента. Хотя отклонение от распределения Пуассона, зафиксированное Шортом и Манделем, было небольшим, именно оно приводит к отрицательной величине параметра Манделя, который может быть измерен в эксперименте.

### 5. СРЕДНЕЕ ЧИСЛО ФОТОНОВ И ПАРАМЕТР МАНДЕЛЯ

Поскольку расчет распределения фотонов для одиночного атома, непрерывно возбуждаемого лазерным светом, до сих пор не был сделан с помощью формулы (2), сравнение нашей теории с теорией Манделя можно провести, используя моменты функции распределения и параметра Манделя, которые мы можем вычислить с помощью найденной нами функции распределения. Найдем сначала среднее число фотонов, которое рассчитывается по формуле

$$\langle n(T) \rangle = \sum_{N=0}^{\infty} N w_N(T), \quad (36)$$

где вероятности определены формулой (24). Подставляя сюда выражения для вероятности (24) и совершая преобразование Лапласа, приходим к следующему выражению:

$$\begin{aligned} [\langle n(T) \rangle \rho_{11}(T)]_{\omega} &= W_{11}(\omega) \sum_{N=1}^{\infty} N \left( \frac{W_{11}(\omega)}{T_1} \right)^N = \\ &= \frac{W_{11}^2(\omega)/T_1}{(1 - W_{11}(\omega)/T_1)^2} = \frac{\rho_{11}^2(\omega)}{T_1}. \end{aligned} \quad (37)$$

При выводе этого выражения мы учли также формулу (17). Совершая здесь обратное преобразование Лапласа, получаем выражение для среднего числа фотонов

$$\langle n(T) \rangle = \frac{1}{\rho_{11}(T)} \int_0^T \frac{dx}{T_1} \rho_{11}(T-x) \rho_{11}(x). \quad (38)$$

Это выражение отличается от формулы (3), найденной Манделем. Формула (38) учитывает антигруппировку фотонов флуоресценции, а формула

$$\langle n \rangle = \langle I \rangle T$$

ее не учитывает.

Найдем теперь математическое выражение для второго факториального момента

$$\langle n^{(2)}(T) \rangle = \sum_{N=0}^{\infty} N(N-1) w_N(T), \quad (39)$$

также входящего в выражение для параметра Манделя. Это выражение тоже можно вычислить, используя преобразование Лапласа, по той же методике, что была использована при вычислении среднего числа фотонов. В результате получим

$$\begin{aligned} \langle n^{(2)}(T) \rangle &= \frac{2}{\rho_{11}(T)} \int_0^T \frac{dx}{T_1} \rho_{11}(T-x) \times \\ &\quad \times \int_0^x \frac{dy}{T_1} \rho_{11}(x-y) \rho_{11}(y). \end{aligned} \quad (40)$$

Это выражение тоже отличается от формулы (4), найденной Манделем.

Подставляя теперь формулу (27) для вероятности в формулу (38), вычислим среднее число фотонов на интервале  $T$ . Получим

$$\langle n(T) \rangle = \frac{k}{2\gamma T_1} \left[ T \frac{1 + e^{-2\gamma T}}{1 - e^{-2\gamma T}} - \frac{1}{\gamma} \right]. \quad (41)$$

Если учесть, что при малых интенсивностях возбуждения мы имеем  $2\gamma T_1 \approx 1$ , то для коротких и длинных интервалов получим следующее выражение для среднего числа фотонов:

$$\langle n(T) \rangle = \begin{cases} \frac{\gamma T}{3} k T, & \gamma T \ll 1, \\ k T - \frac{k}{\gamma}, & \gamma T \gg 1. \end{cases} \quad (42)$$

Эти формулы для среднего числа фотонов отличаются от выражения

$$\langle n \rangle = \langle I \rangle T = k T, \quad (43)$$

используемого Манделем в формуле (7) для параметра  $Q(T)$ . Антигруппировка фотонов проявляется в том, что при малых временах среднее число фотонов пропорционально не первой степени интервала, а его квадрату. Действительно, формула (43) получается в нашей теории, если мы пренебрегаем фотонной антигруппировкой. Тогда распределение фотонов оказывается пуассоновским. Поэтому использование при малых временах формулы (43), которая не учитывает антигруппировку фотонов, в формуле

(7) для параметра  $Q(T)$ , показывающего, насколько реальное распределение фотонов отличается от пуассоновского, является не совсем корректным шагом.

Подставляя формулу (27) в формулу (40), вычислим второй факториальный момент:

$$\langle n^{(2)}(T) \rangle = \left( \frac{k}{2\gamma T_1} \right)^2 \times \left[ - \left( \frac{3T}{\gamma} \right) \frac{1 + e^{-2\gamma T}}{1 - e^{-2\gamma T}} + T^2 + \frac{3}{\gamma^2} \right]. \quad (44)$$

Используя формулы (41) и (44), получим следующее выражение для параметра Манделя:

$$Q(T) = \frac{1}{2\gamma T_1} \frac{k}{\gamma} \times \left\{ \frac{-3\gamma T(1 + e^{-2\gamma T}) + [(\gamma T)^2 + 3](1 - e^{-2\gamma T})}{\gamma T(1 + e^{-2\gamma T}) - (1 - e^{-2\gamma T})} - \frac{\gamma T(1 + e^{-2\gamma T})}{1 - e^{-2\gamma T}} + 1 \right\}. \quad (45)$$

Сравним это выражение с тем, которое получается, если использовать формулу Манделя (7). Как было показано в работах [9, 15, 19], автокорреляционная функция связана с вероятностью следующей простой формулой:

$$g^{(2)}(t) = \frac{\rho_{11}(t)}{\rho_{11}(\infty)}.$$

Если использовать эту формулу, а также формулы (27) и (7), то приходим к такому выражению для параметра Манделя:

$$Q_M(T) = \frac{k}{2\gamma} \left[ -1 + \frac{1 - e^{-2\gamma T}}{2\gamma T} \right]. \quad (46)$$

Из формул (45) и (46) следует, что величина параметра Манделя пропорциональна  $k/2\gamma = kT_1$ , т. е. мала при малой накачке. С другой стороны, временное поведение параметра Манделя не зависит от интенсивности накачки и определяется безразмерным временем  $\gamma T$ . При  $\gamma T \gg 1$  имеем  $Q = 4Q_M$ . Различия в параметрах Манделя, по-видимому, обусловлено тем, что две теоретические формулы для этого параметра соответствуют фактически разным способам измерения моментов распределения. На рис. 8 представлены функции  $Q(T)2\gamma T_1/k$  и  $Q_M(T)2\gamma/k$ . Согласно формуле (45), параметр Манделя изменяется от нуля до предельной величины  $Q(\infty) = -4kT_1$  экспоненциально, причем переход происходит при  $T \approx T_1$ , при этом  $T$  изменяется в

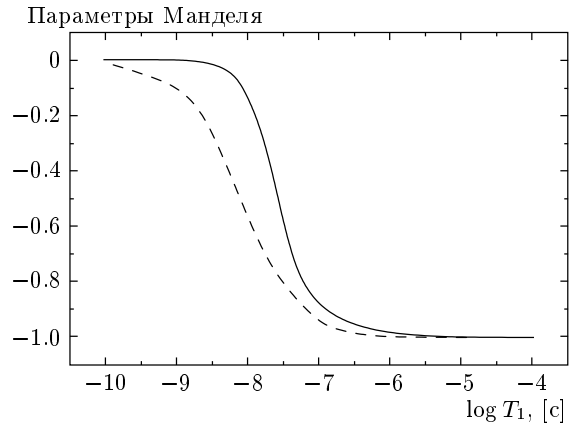


Рис. 8. Сравнение временного поведения параметров Манделя, рассчитанных по формулам (45) (сплошная линия) и (46) (штриховая линия) при  $T_1 = 10^{-8}$  с

пределах одного порядка, что видно на рис. 8. Следовательно, согласно (45), время, в течение которого фотон флуоресценции «помнит» о предшествующем фотоне флуоресценции (время когерентности), приблизительно равно  $T_1$ . С другой стороны, параметр Манделя, описываемый формулой (46), изменяется от нуля до предельной величины  $Q_M(\infty) = -kT_1$  гиперболически, т. е. медленнее. Согласно формуле (45), заметное отличие от пуассоновской статистики наступает только при  $T > T_1$ , а согласно формуле (46) — уже при  $T \leq T_1$ . Все отмеченные выше различия между двумя параметрами Манделя обусловлены, по-видимому, тем, что формулы (45) и (46) отвечают различному способу подсчета фотонов флуоресценции.

## 6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основании проведенных выше исследований можно сделать следующие заключения.

1. Для случая, когда эксперимент поставлен так, что измеряются только промежуточные фотоны, формула (24) дает искомое выражение для функции распределения фотонов флуоресценции, испускаемых одиночным двухуровневым атомом при его непрерывном возбуждении светом лазера.

2. Если скорость вынужденных переходов  $k$  меньше скорости спонтанных переходов  $1/T_1$  по крайней мере на порядок, можно существенно упростить формулу (24), приведя ее к виду (35).

3. Используя формулу (35) для функции распределения фотонов, мы провели численный расчет рас-

пределения фотонов при разной длительности временного интервала регистрации. Найденное распределение фотонов является субпуассоновским, как и было установлено Манделем и Шортом в эксперименте, причем это отличие от распределения Пуассона заметней при малых длительностях интервала наблюдения, когда детектируется мало фотонов. Это видно из сравнения рис. 6 и 7.

4. Для предложенного в данной работе способа измерения функции распределения фотонов выражения для среднего числа фотонов и для второго факториального момента, а следовательно, и для параметра Манделя, отличаются от выражений, найденных Манделем. При количественных различиях временного поведения этого параметра и его предельной величины качественная зависимость сравниваемых формул от длины временного интервала одинакова.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 04-02-17024).

## ЛИТЕРАТУРА

1. R. I. Glauber, in *Quantum Optics and Electronics*, ed. by C. de Witt, A. Blandin, and C. Cohen-Tannoudji, Gordon and Breach, New York (1965) [Р. Глаубер, *Квантовая оптика и квантовая радиофизика*, Мир, Москва (1966)].
2. J. R. Klauder and E. C. G. Sydarshan, *Fundamentals of Quantum Optics*, W. A. Benjamin, Inc., New York (1968) [Дж. Клаудер, Э. Сударшан, *Основы квантовой оптики*, Мир, Москва (1970)].
3. M. Lax, *Fluctuations and Coherence in Classical and Quantum Physics*, Gordon and Breach, New York (1968) [М. Лэкс, *Флуктуации и когерентные явления*, Мир, Москва (1974)].
4. R. Loudon, *The Quantum Theory of Light*, Clarendon Press, Oxford (1973) [Р. Лоудон, *Квантовая теория света*, Мир, Москва (1976)].
5. L. Mandel and E. Wolf, *Optical Coherence and Quantum Optics*, Cambridge University Press, Cambridge (1995) [Л. Мандель, Э. Вольф, *Оптическая когерентность и квантовая оптика*, Физматлит, Москва (2000)].
6. L. Mandel, *Opt. Lett.* **4**, 205 (1983).
7. L. Mandel, *Proc. Phys. Soc. (London)* **72**, 1037 (1958).
8. P. L. Kelley and W. H. Kleiner, *Phys. Rev.* **136**, 316 (1964).
9. M. S. Kim and P. L. Knight, *Phys. Rev. A* **36**, 5265 (1987).
10. E. Barkai, Y. J. Jung, and R. Silbey, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 207403 (2001).
11. Y. J. Jung, E. Barkai, and R. Silbey, *Adv. Chem. Phys.* **123**, 199 (2002).
12. M. S. Kim, P. L. Knight, and K. Wodkiewich, *Opt. Comm.* **62**, 385 (1987).
13. B. R. Mollow, *Phys. Rev. A* **12**, 1919 (1975).
14. И. С. Осадько, *ЖЭТФ* **113**, 1606 (1998).
15. И. С. Осадько, *Селективная спектроскопия одиночных молекул*, Физматлит, Москва (2000) [I. S. Osad'ko, *Selective Spectroscopy of Single Molecules*, Springer, Berlin (2002)].
16. Y. Zheng and F. L. H. Brown, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 238305 (2003).
17. Y. Zheng and F. L. H. Brown, *J. Chem. Phys.* **119**, 11814 (2003).
18. R. Short and L. Mandel, *Phys. Rev. Lett.* **51**, 384 (1983).
19. I. S. Osad'ko and L. B. Yershova, *J. Lum.* **87–89**, 184 (2000).