

Аннотация

В работе исследуется динамика квантовых систем, взаимодействующих с электромагнитным полем. Вне рамок резонансного приближения и приближения вращающейся волны статистическая матрица плотности и вероятности квантовых переходов представлены интегралами по траекториям в пространстве энергетических состояний исследуемой системы. На базе полученных выражений разработан алгоритм численного моделирования динамики квантовых систем, взаимодействующих с электромагнитным полем.

Ключевые слова: Численное моделирование; Интегрирование по траекториям; Квантовая оптика; Многофотонные процессы; Нерезонансные процессы

Введение

Развитие лазерных технологий позволяет экспериментально реализовать возбуждение квантовых состояний многоуровневых квантовых систем под действием ультракоротких лазерных импульсов высокой интенсивности. Интерес представляет многофотонное возбуждение квантовых систем, а также квантовые переходы под действием нерезонансного электромагнитного излучения, так как исследование данных процессов позволит создать и развить технологии многофотонного, нерезонансного управления квантовыми системами – атомами и молекулами.

В настоящее время активно проводятся исследования, как экспериментальные так и теоретические, в области возбуждения вращательных квантовых состояний молекул под действием группы лазерных импульсов [1, 2, 3]. В работах было показано, что под действием нерезонансного электромагнитного излучения, состоящего из последовательности лазерных импульсов, наблюдается заселение высоковозбужденных вращательных состояний молекул азота $^{14}\text{N}_2$ и $^{15}\text{N}_2$. При определенной периодичности лазерных импульсов в группе наблюдается резонансное увеличение вероятности заселения высоких вращательных состояний облучаемой молекулы. Вращательная динамика молекулы в данном эксперименте может быть описана в рамках рамановских переходов.

Описание взаимодействия квантовых систем с интенсивным электромагнитным полем представляет известные трудности при использовании методов теории возмущений. В связи с этим важным представляется развитие непертурбативных методов описания эволюции квантовых систем (атомов, молекул), взаимодействующих с электромагнитным полем. Одним из непертурбативных методов является формализм функционального интегрирования (интегрирования по траекториям) [4], [5]. В работах [6, 7, 8, 9] в формализме интегрирования по траекториям развивается непертурбативный метод вычисления вероятностей переходов многоуровневых квантовых систем под действием квантованного электромагнитного поля в рамках подхода на основе функционала влияния [4, 10]. В работе [11] вероятности переходов квантовой системы, взаимодействующей с гармонической электромагнитной волной, представлены в виде интеграла по траекториям в пространстве энергетических состояний.

В данной работе этот подход будет расширен для произвольного электромагнитного излучения. В связи с тем, что аналитическое решение полученных уравнений затруднительно, мы разрабатываем алгоритм численного решения полученных уравнений для нахождения динамики поведения многоуровневой квантовой системы под действием электромагнитного поля.

1. Представление вероятностей квантовых переходов в формализме функциональных интегралов в пространстве энергетических состояний

Рассмотрим многоуровневую квантовую систему, взаимодействующую с электромагнитным полем. Данная модель описывается гамильтонианом \hat{H}_{full} , который имеет структуру

$$\hat{H}_{full} = \hat{H}_{syst} + \hat{V}, \quad (1.1)$$

где \hat{H}_{syst} – гамильтониан квантовой системы, который определяет стационарные состояния $|l\rangle$ с энергиями E_l и свойствами полноты и ортонормированности:

$$\hat{H}_{syst}|l\rangle = E_l|l\rangle, \quad \sum_{l=1}^N |l\rangle\langle l| = 1, \quad \langle l'|l\rangle = \delta_{l'l}; \quad (1.2)$$

\hat{V} – оператор взаимодействия системы и электромагнитного поля.

Нашей задачей является определение вероятностей переходов $P(l_f, t | l_{in}, 0)$ исследуемой системы под действием электромагнитного поля между квантовыми состояниями $|l_{in}\rangle$ в момент времени $t = 0$ и $|l_f\rangle$ в момент времени $t > 0$.

Будем описывать исследуемую систему статистическим оператором $\hat{\rho}(t)$ уравнение эволюции которого в представлении взаимодействия имеет вид:

$$\hat{\rho}(t) = \hat{U}_D(t)\hat{\rho}(0)\hat{U}_D^+(t), \quad \text{где} \quad \hat{U}_D(t) = T \exp\left[-\frac{i}{\hbar} \int_0^t \hat{V}_D(\tau) d\tau\right] \quad (1.3)$$

– оператор эволюции в представлении Дирака,

$$\hat{V}_D(\tau) = \exp\left[\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{sys} \tau\right] \hat{V}(\tau) \exp\left[-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{sys} \tau\right] \quad (1.4)$$

– оператор взаимодействия системы и электромагнитного поля в представлении Дирака.

Запишем уравнение (1.3) эволюции статистической матрицы плотности в энергетическом представлении:

$$\rho_{l_f m_f}(t) = \sum_{l_{in}, m_{in}} \langle l_f | \hat{U}_D(t) | l_{in} \rangle \rho_{l_{in} m_{in}} \langle m_{in} | \hat{U}_D^+(t) | m_f \rangle, \quad (1.5)$$

где $\rho_{l_f m_f}(t) = \langle l_f | \hat{\rho}(t) | m_f \rangle$ и $\rho_{l_{in} m_{in}} = \langle l_{in} | \hat{\rho}(0) | m_{in} \rangle$.

Амплитуду перехода $\langle l_f | \hat{U}_D(t) | l_{in} \rangle$ за интервал времени t из состояния $|l_{in}\rangle$ в состояние $|l_f\rangle$ можно представить как сумму по «траекториям» в пространстве квантовых состояний

$$\langle l_f | \hat{U}_D(t) | l_{in} \rangle = U_D(l_f, t | l_{in}, 0) = \sum_{l_1, \dots, l_K=1}^N \int_0^1 \dots \int_0^1 \exp[iS[l_f, l_K, \xi_K; \dots; l_k, l_{k-1}, \xi_{k-1}; \dots; l_1, l_{in}, \xi_0]] d\xi_0 \dots d\xi_K, \quad (1.6)$$

с условиями: $t_{K+1} = t, l_{K+1} = l_f$.

В уравнении (1.6) безразмерное (в единицах \hbar) действие S является функционалом за интервал времени t , определенным на пространстве траекторий в дискретном пространстве переменных l_k , размеры которого определяются числом квантовых уровней N исследуемой системы, и непрерывном ограниченном на $[0, 1]$ пространстве s -числовых переменных ξ_k :

$$S[l_f, l_K, \xi_K; \dots; l_k, l_{k-1}, \xi_{k-1}; \dots; l_1, l_{in}, \xi_0] = \sum_{k=1}^{K+1} S[l_k, l_{k-1}, \xi_{k-1}], \quad (1.7)$$

где $S[l_k, l_{k-1}, \xi_{k-1}]$ – безразмерное (в единицах постоянной Планка \hbar) действие в энергетическом представлении за интервал времени $(t_k - t_{k-1})$

$$S[l_k, l_{k-1}; \xi_{k-1}] = 2\pi(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1} - \frac{1}{\hbar} V_{l_k l_{k-1}} \left(\frac{t_k + t_{k-1}}{2} \right) \cos\left(2\pi(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1} - \omega_{l_k, l_{k-1}} \frac{t_k + t_{k-1}}{2}\right) (t_k - t_{k-1}), \quad (1.8)$$

$$V_{l_k l_{k-1}}(\tau) = \langle l_k | \hat{V}(\tau) | l_{k-1} \rangle. \quad (1.9)$$

Для доказательства формул (1.6), (1.7), (1.8), используя групповые свойства оператора \hat{U}_D и полноту векторов-состояний $|l_k\rangle$ (1.2), представим ядро оператора эволюции $\langle l_f | \hat{U}_D(t) | l_{in} \rangle$ в виде:

$$\langle l_f | \hat{U}_D(t) | l_{in} \rangle = \sum_{l_1, \dots, l_K=1}^N \prod_{k=1}^{K+1} \langle l_k | \hat{U}_D(t_k, t_{k-1}) | l_{k-1} \rangle, \quad (1.10)$$

где $t_{K+1} = t, l_{K+1} = l_f, 0 = 0, l_{in} = l_{in}$,

$$\hat{U}_D(t_k, t_{k-1}) = \exp\left[-\frac{i}{\hbar} \int_{t_{k-1}}^{t_k} \hat{V}_D(\tau) d\tau\right], \quad t_k > t_{k-1}. \quad (1.11)$$

Докажем, что для малых интервалов времени $((t_k - t_{k-1}) \rightarrow 0)$ ядро оператора эволюции $\langle l_k | \hat{U}_D(t_k, t_{k-1}) | l_{k-1} \rangle$ имеет вид:

$$\langle l_k | \hat{U}_D(t_k, t_{k-1}) | l_{k-1} \rangle = \int_0^1 \exp[iS[l_k, t_k; l_{k-1}, t_{k-1}; \xi_{k-1}]] d\xi_{k-1}, \quad (1.12)$$

где $S[l_k, l_{k-1}; \xi_{k-1}]$ определяется выражением (1.8).

Для доказательства справедливости выражения (1.12) для ядра оператора эволюции, используя (1.11) и представляя его в виде ряда, запишем $\langle l_k | \hat{U}_D(t_k, t_{k-1}) | l_{k-1} \rangle$ для малых интервалов времени $(t_k - t_{k-1}) \rightarrow 0$ в виде:

$$\langle l_k | \hat{U}_D(t_k, t_{k-1}) | l_{k-1} \rangle = \langle l_k | l_{k-1} \rangle - \frac{i}{\hbar} \int_{t_{k-1}}^{t_k} \langle l_k | \hat{V}_D(\tau) | l_{k-1} \rangle d\tau. \quad (1.13)$$

Гамильтониан исследуемой многоуровневой квантовой системы \hat{H}_{sys} и гамильтониан взаимодействия квантовой системы с электромагнитным полем $\hat{V}(\tau)$ в энергетическом представлении, используя спектральное разложение по собственным состояниям $|l\rangle$ со свойствами (1.2), представим в виде:

$$\hat{H}_{sys} = \sum_{l=1}^N E_l |l\rangle\langle l|; \quad \hat{V}(\tau) = \sum_{n=1}^N \sum_{l'=1}^N |l'\rangle\langle l'| \hat{V}(\tau) |l\rangle\langle l| = \sum_{l=1}^N \sum_{l'=1}^N V_{l'l}(\tau) |l'\rangle\langle l|, \quad (1.14)$$

где $|l\rangle$ - собственные вектора Гамильтониана \hat{H}_{sys} , $V_{l'l}(\tau) = \langle l'| \hat{V}(\tau) |l\rangle$ – матричный элемент оператора взаимодействия в момент времени τ .

Используя выражения (1.14), оператор взаимодействия в представлении Дирака (1.4) представим в виде, который удобен для конкретизации оператора эволюции:

$$\hat{V}_D(\tau) = \sum_{l',l=1}^N V_{l'l}(\tau) \exp[i\omega_{l'l}\tau] |l'\rangle\langle l|, \quad (1.15)$$

где $\omega_{l'l} = (E_{l'} - E_l) / \hbar$ – частота квантового перехода между стационарными состояниями с энергиями $E_{l'}$ и E_l

Построим матричный элемент потенциала взаимодействия $\langle l_k | \hat{V}_D(\tau) | l_{k-1} \rangle$ с учетом (1.15) в виде

$$\langle l_k | \hat{V}_D(\tau) | l_{k-1} \rangle = \sum_{l',l=1}^N \delta_{l_k l'} \delta_{(l_k - l_{k-1}), (l' - l)} \delta_{ll_{k-1}} V_{l'l}(\tau) \exp[i\omega_{l'l}\tau], \quad (1.16)$$

При построении (1.16) была использована ортонормированность векторов-состояний исследуемой квантовой системы (1.2), а именно $\delta_{l_k l'} = \langle l_k | l' \rangle$ и $\delta_{ll_{k-1}} = \langle l | l_{k-1} \rangle$, а также введен символ Кронекера $\delta_{(l_k - l_{k-1}), (l' - l)}$, который эквивалентен введению единичного множителя.

Введем интегральное представление для символа Кронекера:

$$\delta_{(l_k - l_{k-1}), (l' - l)} = \int_0^1 \exp[i2\pi(l_k - l_{k-1} - l' + l)\xi_{k-1}] d\xi_{k-1}. \quad (1.17)$$

С учетом (1.17) выражение (1.16) примет вид

$$\langle l_k | \hat{V}_D(\tau) | l_{k-1} \rangle = \int_0^1 \exp[i2\pi(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1}] \sum_{l',l=1}^N \delta_{l_k l'} \delta_{ll_{k-1}} \exp[-i2\pi(l' - l)\xi_{k-1} + i\omega_{l'l}\tau] V_{l'l}(\tau) d\xi_{k-1}. \quad (1.18)$$

Введем обозначение

$$\tilde{V}_{l'l}(\tau, \xi_{k-1}) = \exp[-i2\pi(l' - l)\xi_{k-1} + i\omega_{l'l}\tau] V_{l'l}(\tau), \quad (1.19)$$

и заметим, что $\tilde{V}_{l'l}(\tau, \xi_{k-1})$ является эрмитовой величиной, то есть $\tilde{V}_{l'l}(\tau, \xi_{k-1}) = \tilde{V}_{l'l}^\dagger(\tau, \xi_{k-1}) = \tilde{V}_{l'l}^*(\tau, \xi_{k-1})$, а также $\tilde{V}_{ll}(\tau, \xi_{k-1}) = 0$.

С учетом (1.19), выражение (1.18) упрощается

$$\langle l_k | \hat{V}_D(\tau) | l_{k-1} \rangle = \int_0^1 \exp[i2\pi(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1}] \sum_{l',l=1}^N \delta_{l_k l'} \delta_{ll_{k-1}} \tilde{V}_{l'l}(\tau, \xi_{k-1}) d\xi_{k-1}. \quad (1.20)$$

Учитывая эрмитовость $\tilde{V}_{l'l}(\tau, \xi_{k-1})$, выражение (1.20) можно преобразовать к более удобному виду:

$$\begin{aligned} \langle l_k | \hat{V}_D(\tau) | l_{k-1} \rangle &= \int_0^1 \exp[i2\pi(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1}] \left(\sum_{l' < l=1}^N \delta_{l_k l'} \delta_{ll_{k-1}} \tilde{V}_{l'l}(\tau, \xi_{k-1}) + \sum_{l' > l=1}^N \delta_{l_k l'} \delta_{ll_{k-1}} \tilde{V}_{l'l}(\tau, \xi_{k-1}) \right) d\xi_{k-1} = \\ &= \int_0^1 \exp[i2\pi l(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1}] (\tilde{V}_{l_k l_{k-1}}(\tau, \xi_{k-1})|_{l_k < l_{k-1}} + \tilde{V}_{l_k l_{k-1}}(\tau, \xi_{k-1})|_{l_k > l_{k-1}}) d\xi_{k-1} = \\ &= \int_0^1 \exp[i2\pi(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1}] \tilde{V}_{l_k l_{k-1}}^*(\tau, \xi_{k-1})|_{l_k > l_{k-1}} + \tilde{V}_{l_k l_{k-1}}(\tau, \xi_{k-1})|_{l_k > l_{k-1}} d\xi_{k-1} = \\ &= \int_0^1 \exp[i2\pi(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1}] 2Re[\tilde{V}_{l_k l_{k-1}}(\tau, \xi_{k-1})] d\xi_{k-1} \end{aligned} \quad (1.21)$$

Учитывая (1.19), формулу (1.21) представим в виде

$$\langle l_k | \hat{V}_D(\tau) | l_{k-1} \rangle = \int_0^1 \exp[i2\pi(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1}] V_{l_k l_{k-1}} \cos[2\pi(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1} - \omega_{l_k l_{k-1}}\tau] d\xi_{k-1} \quad (1.22)$$

В выражении (1.13) для ядра оператора эволюции учтем выражение (1.22), а символ Кронекера $\delta_{l_k l_{k-1}} = \langle l_k | l_{k-1} \rangle$ представим интегралом

$$\delta_{l_k l_{k-1}} = \int \exp[i2\pi(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1}] d\xi_{k-1}, \quad (1.23)$$

так что оно примет вид

$$\langle l_k | \hat{U}_D(t_k, t_{k-1}) | l_{k-1} \rangle = \int_0^1 \exp[i2\pi(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1}] \left[1 - \frac{i}{\hbar} \int_{t_{k-1}}^{t_k} V_{l_k l_{k-1}}(\tau) (\cos(2\pi\xi_{k-1}(l_k - l_{k-1}) - (\omega_{l_k l_{k-1}} - \omega)\tau)) d\tau \right] d\xi_{k-1}. \quad (1.24)$$

Интеграл в формуле (1.24) для малых интервалов времени $(t_k - t_{k-1}) \rightarrow 0$ можно аппроксимировать выражением:

$$\begin{aligned} & \int_{t_{k-1}}^{t_k} V_{l_k l_{k-1}}(\tau) (\cos(2\pi\xi_{k-1}(l_k - l_{k-1}) - (\omega_{l_k l_{k-1}} - \omega)\tau)) d\tau \approx \\ & \approx V_{l_k l_{k-1}}\left(\frac{t_k + t_{k-1}}{2}\right) \cos(2\pi(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1} - \omega_{l_k, l_{k-1}} \frac{t_k + t_{k-1}}{2})(t_k - t_{k-1}). \end{aligned} \quad (1.25)$$

Используя аппроксимацию (1.25), ядро оператора эволюции (1.24) примет вид:

$$\begin{aligned} \langle l_k | \hat{U}_D(t_k, t_{k-1}) | l_{k-1} \rangle &= \int_0^1 \exp[i2\pi(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1}] \left[1 - \frac{i}{\hbar} \times \right. \\ & \times V_{l_k l_{k-1}}\left(\frac{t_k + t_{k-1}}{2}\right) \cos(2\pi(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1} - \omega_{l_k, l_{k-1}} \frac{t_k + t_{k-1}}{2})(t_k - t_{k-1}) \left. \right] d\xi_{k-1}. \end{aligned} \quad (1.26)$$

Для малых временных интервалов $(t_k - t_{k-1}) \rightarrow 0$ формула (1.26) эквивалентна выражению:

$$\begin{aligned} \langle l_k | \hat{U}_D(t_k, t_{k-1}) | l_{k-1} \rangle &= \int_0^1 \exp[i(2\pi(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1} - \\ & - \frac{1}{\hbar} V_{l_k l_{k-1}}(\tau) \cos(2\pi(l_k - l_{k-1})\xi_{k-1} - \omega_{l_k, l_{k-1}} \frac{t_k + t_{k-1}}{2})(t_k - t_{k-1}))] d\xi_{k-1}. \end{aligned} \quad (1.27)$$

Введя в полученное выражение (1.27) обозначение (1.8), мы получим для амплитуды перехода за интервал времени $(t_k - t_{k-1}) \rightarrow 0$ выражение (1.12). Подставляя (1.12) в (1.10) и используя обозначение (1.7), получим амплитуду квантового перехода (1.6) за любой конечный интервал времени $t = \sum_{k=1}^K (t_k - t_{k-1})$.

Выражение (1.27) совпадает с выражением для ядра оператора эволюции (1.6) с учетом явного вида действия в энергетическом представлении (1.8), что и требовалось доказать.

Уравнение эволюции матрицы плотности (1.5) с учетом (1.6) запишем в виде:

$$\begin{aligned} \rho_{l_f, m_f}(t) &= \sum_{l_{in}, \dots, l_K=1}^N \sum_{m_{in}, \dots, m_K=1}^N \int_0^1 \dots \int_0^1 d\xi_0 \dots d\xi_K d\zeta_0 \dots d\zeta_K \times \\ & \times \exp[i(S[l_f, l_K, \xi_K; \dots; l_k, l_{k-1}, \xi_{k-1}; \dots; l_1, l_{in}, \xi_0] - S[m_f, m_K, \zeta_K; \dots; m_k, m_{k-1}, \zeta_{k-1}; \dots; m_1, m_{in}, \zeta_0])] \rho_{l_{in}, m_{in}}(0). \end{aligned} \quad (1.28)$$

Уравнение (1.28) позволяет определить $P(l_f, t | l_{in}, 0)$ вероятность квантового перехода из чистого квантового состояния $\hat{\rho}(0) = |l_{in}\rangle\langle l_{in}|$ ($\rho_{l_{in} m_{in}}(0) = \delta_{l_{in} m_{in}}$) в начальный момент времени $t = 0$ в конечное чистое квантовое состояние $\hat{\rho}(t) = |l_f\rangle\langle l_f|$ ($\rho_{l_f m_f}(t) = P_{l_f}(t) = \delta_{l_f m_f}$) в конечный момент времени t определяется:

$$\begin{aligned} P(l_f, t | l_{in}, 0) &= \sum_{l_1, \dots, l_K=1}^N \sum_{m_1, \dots, m_K=1}^N \int_0^1 \dots \int_0^1 d\xi_0 \dots d\xi_K d\zeta_0 \dots d\zeta_K \times \\ & \times \exp[i(S[l_f, l_K, \xi_K; \dots; l_k, l_{k-1}, \xi_{k-1}; \dots; l_1, l_{in}, \xi_0] - S[l_f, m_K, \zeta_K; \dots; m_k, m_{k-1}, \zeta_{k-1}; \dots; m_1, l_{in}, \zeta_0])]. \end{aligned} \quad (1.29)$$

Выражение (1.29) можно переписать в виде

$$P(l_f, t | l_{in}, 0) = U^*(l_f, t | l_{in}, 0) U(l_f, t | l_{in}, 0) \quad (1.30)$$

где $U(l_f, t | l_{in}, 0)$ – амплитуда квантового перехода, которая представима в виде интеграла по «траекториям» в пространстве энергетических состояний, которая определяется формулой (1.6).

Когда в начальный момент времени $t = 0$ состояние исследуемой системы задано в виде распределения $\hat{\rho}(0) = \sum_{l_{in}=0}^N P_{l_{in}}(0) |l_{in}\rangle\langle l_{in}|$ ($\rho_{l_{in} m_{in}}(0) = P_{l_{in}}(0) \delta_{l_{in} m_{in}}$) по чистым квантовым состояниям $|l_{in}\rangle$, то в этом случае вероятность наблюдения квантовой системы в состоянии l_f в момент времени t имеет структуру

$$P(l_f, t | \rho(0)) = \sum_{l_{in}=0}^N P(l_f, t | l_{in}, 0) P_{l_{in}}(0) \quad (1.31)$$

Формулы (1.29), (1.30), (1.31) являются замкнутыми выражениями для вычисления квантовых переходов многоуровневой квантовой системы под действием электромагнитного поля.

2. Итерационный алгоритм расчета амплитуд переходов многоуровневой квантовой системы под действием электромагнитного излучения

Рассмотрим алгоритм численного расчета амплитуды квантового перехода $U(l_f, t|l_{in}, 0)$ по формуле (1.6) и вероятностей квантовых переходов по формуле (1.30).

Вычисление амплитуд квантовых переходов за конечный интервал времени t могут быть проведено путем вычисления по следующей цепочке зацепленных уравнений

$$U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0) = C_1 \int_0^1 U(l_1, t_1|l_{in}, 0; \xi_1) d\xi_1, \quad (2.1)$$

...

$$U_{K+1}(l_{K+1}, t_{K+1}|l_{in}, 0) = C_{K+1} \sum_{l_k=0}^N \int_0^1 U(l_{K+1}, t_{K+1}|l_k, t_k; \xi_k) U_K(l_k, t_k|l_{in}, 0) d\xi_{K+1}, \quad (2.2)$$

где C_k при $k = 1, \dots, K+1$ определяют нормировочные коэффициенты.

Ядро оператора эволюции

$$U(l_k, t_k|l_{k-1}, t_{k-1}; \xi_k) = \exp[iS_{l_k l_{k-1}}(t_k, t_{k-1}; \xi_k)]. \quad (2.3)$$

Рассмотрим первый шаг – численное вычисление выражения (2.1)

По формуле Эйлера ядро оператора эволюции $U(l_1, t_1|l_{in}, 0; \xi_1)$, определенного формулой (2.3), представим в виде

$$U(l_1, t_1|l_{in}, 0; \xi_1) = \cos[S_{l_1 l_{in}}(t_1, 0; \xi_1)] + i \sin[S_{l_1 l_{in}}(t_1, 0; \xi_1)]. \quad (2.4)$$

Учитывая, что амплитуда вероятности $U_1(l_1, t_1)$ в уравнении (2.1) является комплексным числом, а также используя выражение (2.4), представим (2.1) в виде:

$$\Re[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)] + i\Im[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)] = C_1 \int_0^1 (\cos[S_{l_1 l_{in}}(t_1, 0; \xi_1)] + i \sin[S_{l_1 l_{in}}(t_1, 0; \xi_1)]) d\xi_1, \quad (2.5)$$

где введены обозначения действительной $\Re[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]$ и мнимой $\Im[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]$ частей амплитуды вероятности наблюдения квантовой системы в момент времени t_1 в состоянии l_1 .

Приравнявая действительную и мнимую части (2.5), получим уравнения:

$$\Re[\tilde{U}_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)] = \frac{1}{C_1} \Re[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)] = \int_0^1 \cos[S_{l_1 l_{in}}(t_1, 0; \xi_1)] d\xi_1, \quad (2.6)$$

$$\Im[\tilde{U}_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)] = \frac{1}{C_1} \Im[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)] = \int_0^1 \sin[S_{l_1 l_{in}}(t_1, 0; \xi_1)] d\xi_1. \quad (2.7)$$

Правая часть (2.6), (2.7) вычисляется на компьютере численно.

Вероятность наблюдения квантовой системы в состоянии $|l_1\rangle$ в момент времени t_1 определяется выражением

$$P(l_1, t_1|l_{in}, 0) = \Re[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]^2 + \Im[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]^2. \quad (2.8)$$

Известно, что вероятность $P(l_1, t_1|l_{in}, 0)$ нормирована на единицу $\sum_{l_1=0}^N P(l_1, t_1|l_{in}, 0) = 1$. Поэтому коэффициент C_1 может быть вычислен по формуле

$$C_1 = \sqrt{\sum_{l_1=0}^N (\Re[\tilde{U}_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]^2 + \Im[\tilde{U}_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]^2)}. \quad (2.9)$$

Учитывая явный вид коэффициента C_1 (2.9), нормированные действительная $\Re[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]$ и мнимая $\Im[\tilde{U}_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]$ части амплитуды вероятности наблюдения квантовой системы в момент времени t_1 в состоянии l_1 определяются формулами

$$\Re[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)] = \frac{\Re[\tilde{U}_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]}{\sqrt{\sum_{l_1=0}^N (\Re[\tilde{U}_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]^2 + \Im[\tilde{U}_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]^2)}}, \quad (2.10)$$

$$\Im[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)] = \frac{\Im[\tilde{U}_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]}{\sqrt{\sum_{l_1=0}^N (\Re[\tilde{U}_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]^2 + \Im[\tilde{U}_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]^2)}}. \quad (2.11)$$

Рассмотрим вычисление следующего уравнения в цепочке (2.1)-(2.2). Оно имеет следующий вид:

$$U_2(l_2, t_2|l_{in}, 0) = C_2 \sum_{l_1=0}^N \int_0^1 U(l_2, t_2|l_1, t_1; \xi_2) U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0) d\xi_2.$$

По формуле Эйлера ядро оператора эволюции $U(l_2, t_2|l_1, t_1; \xi_2)$ представим в виде

$$U(l_2, t_2|l_1, t_1; \xi_2) = \cos[S_{l_2 l_1}(t_2, t_1; \xi_2)] + i \sin[S_{l_2 l_1}(t_2, t_1; \xi_2)]. \quad (2.12)$$

Учитывая, что амплитуды вероятности $U_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)$, $U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)$ – комплексные числа, а также учитывая (2.12), получим:

$$\begin{aligned} & \Re[U_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)] + i \Im[U_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)] = \\ & = C_2 \sum_{l_1=0}^N \int_0^1 (\cos[S_{l_2 l_1}(t_2, t_1; \xi_2)] \Re[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)] - \sin[S_{l_2 l_1}(t_2, t_1; \xi_2)] \Im[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)] + \\ & + i(\sin[S_{l_2 l_1}(t_2, t_1; \xi_2)] \Re[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)] + \cos[S_{l_2 l_1}(t_2, t_1; \xi_2)] \Im[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]) d\xi_2. \end{aligned} \quad (2.13)$$

Приравнивая в уравнении (2.13) вещественные и мнимые части, получим два уравнения

$$\begin{aligned} & \Re[\tilde{U}_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)] = \frac{1}{C_2} \Re[U_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)] = \\ & = \sum_{l_1=0}^N \int_0^1 (\cos[S_{l_2 l_1}(t_2, t_1; \xi_2)] \Re[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)] - \sin[S_{l_2 l_1}(t_2, t_1; \xi_2)] \Im[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]) d\xi_1, \end{aligned} \quad (2.14)$$

$$\begin{aligned} & \Im[\tilde{U}_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)] = \frac{1}{C_2} \Im[U_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)] = \\ & = \sum_{l_1=0}^N \int_0^1 (\sin[S_{l_2 l_1}(t_2, t_1; \xi_2)] \Re[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)] + \cos[S_{l_2 l_1}(t_2, t_1; \xi_2)] \Im[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]) d\xi_1. \end{aligned} \quad (2.15)$$

Величины $\Re[\tilde{U}_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)]$ и $\Im[\tilde{U}_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)]$ представляют ненормированные вещественную и мнимую части амплитуды наблюдения квантовой системы в состоянии $|l_2\rangle$ в момент времени t_2 соответственно. Они вычисляются на компьютере численно. При этом вычислении используются конкретизированные ранее (при первом шаге описываемого алгоритма) численные значения величин $\Re[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]$ и $\Im[U_1(l_1, t_1|l_{in}, 0)]$ по формулам (2.10), (2.11).

Вероятность наблюдения квантовой системы в состоянии $|l_2\rangle$ в момент времени t_2 определяется выражением

$$P(l_2, t_2|l_{in}, 0) = \Re[U_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)]^2 + \Im[U_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)]^2, \quad (2.16)$$

которая должна быть нормирована на единицу $\sum_{l_2=0}^N P(l_2, t_2|l_{in}, 0) = 1$. Поэтому коэффициент C_2 вычисляется по формуле

$$C_2 = \sqrt{\sum_{l_1=0}^N (\Re[\tilde{U}_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)]^2 + \Im[\tilde{U}_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)]^2)}. \quad (2.17)$$

Учитывая явный вид коэффициента C_2 (2.17), нормированные действительная $\Re[U_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)]$ и мнимая $\Im[U_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)]$ части амплитуды вероятности наблюдения квантовой системы в момент времени t_2 в состоянии l_2 определяются формулами

$$\Re[U_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)] = \frac{\Re[\tilde{U}_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)]}{\sqrt{\sum_{l_2=0}^N (\Re[\tilde{U}_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)]^2 + \Im[\tilde{U}_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)]^2)}}, \quad (2.18)$$

$$\Im[U_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)] = \frac{\Im[\tilde{U}_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)]}{\sqrt{\sum_{l_2=0}^N (\Re[\tilde{U}_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)]^2 + \Im[\tilde{U}_2(l_2, t_2|l_{in}, 0)]^2)}} \quad (2.19)$$

Последующие уравнения в цепочке (2.1)-(2.2) вычисляются аналогично.

Таким образом, вычисляются вещественные $\Re[U_k(l_k, t_k|l_{in}, 0)]$ и мнимые $\Im[U_k(l_k, t_k|l_{in}, 0)]$ частицы амплитуд вероятности и вероятности $P(l_k, t_k|l_{in}, 0)$ наблюдения исследуемой многоуровневой квантовой системы в состояниях $|l_k\rangle$ в моменты времени t_k .

Вращательная динамика молекулы N_2 под действием группы лазерных импульсов

В работе [1] были опубликованы результаты экспериментов по возбуждению вращательных состояний неполярных молекул $^{14}N_2$ и $^{15}N_2$ последовательностью лазерных импульсов. Обсуждение полученных результатов проводилось в работах [2, 3]. В данных экспериментах группа молекул N_2 исследовалась при температуре $T = 6.3\text{ K}$, их начальное состояние определялось распределением Больцмана по энергиям вращательных уровней. Молекулы облучались группой из семи лазерных импульсов, период следования которых варьировался в интервале от 6.5 пс до 9.5 пс. Каждый лазерный импульс имел длительность порядка 500 фс. Пиковая интенсивность лазерного излучения достигала значений $I_0 = 5 * 10^{12}\text{ Вт/см}^2$. В экспериментах наблюдалось изменение вероятностей нахождения исследуемых молекул на вращательных энергетических уровнях после действия группы импульсов. Варьировалась длительность между импульсами внутри одной группы и была исследована зависимость распределения молекул по вращательным уровням энергии в зависимости от длительности временного промежутка между лазерными импульсами.

Эксперименты с молекулами азота $^{14}N_2$ и $^{15}N_2$ показали, что вероятность распределения исследуемых молекул по вращательным уровням энергии существенно зависит как от периода следования импульсов, так и от изотопного состава молекулы азота. Из анализа экспериментов следует, что при периоде следования лазерных импульсов $\tau \approx 8.38\text{ пс}$ наблюдается максимальное число молекул $^{14}N_2$ в высоколежащих ($l \geq 2$) вращательных состояниях и минимальное число молекул, находящихся на нижних энергетических уровнях ($l < 2$). Для возбуждения молекул $^{15}N_2$ значение периода следования импульсов $\tau \approx 8.98\text{ пс}$. Распределение вероятностей по энергиям вращательных уровней молекул азота после взаимодействия с группой ультракоротких лазерных импульсов существенно отличается от распределения Больцмана, в котором они были приготовлены в начальный момент времени. В эксперименте наблюдается явление резонанса. Эксперименты убедительно показывают, что резонансные возбуждения молекул $^{14}N_2$, $^{15}N_2$ наступают при разных периодах следования лазерных импульсов. Этот факт представляет интерес для развития технологии селективного разделения изотопов интенсивным лазерным излучением.

На основе разработанного итерационного алгоритма вычисления амплитуд вероятностей квантовых переходов было проведено численное моделирование вращательной динамики молекул $^{14}N_2$ и $^{15}N_2$ под действием групп импульсов, описанных в работе [1]. На рисунке 1 представлены распределения вероятностей наблюдения P_l молекул в определенных вращательных состояниях l при воздействии групп лазерных импульсов с периодом $\tau \approx 8.38\text{ пс}$ (резонанс возбуждения молекулы $^{14}N_2$) при различных интенсивностях в сравнении с начальным тепловым распределением (распределением Больцмана).

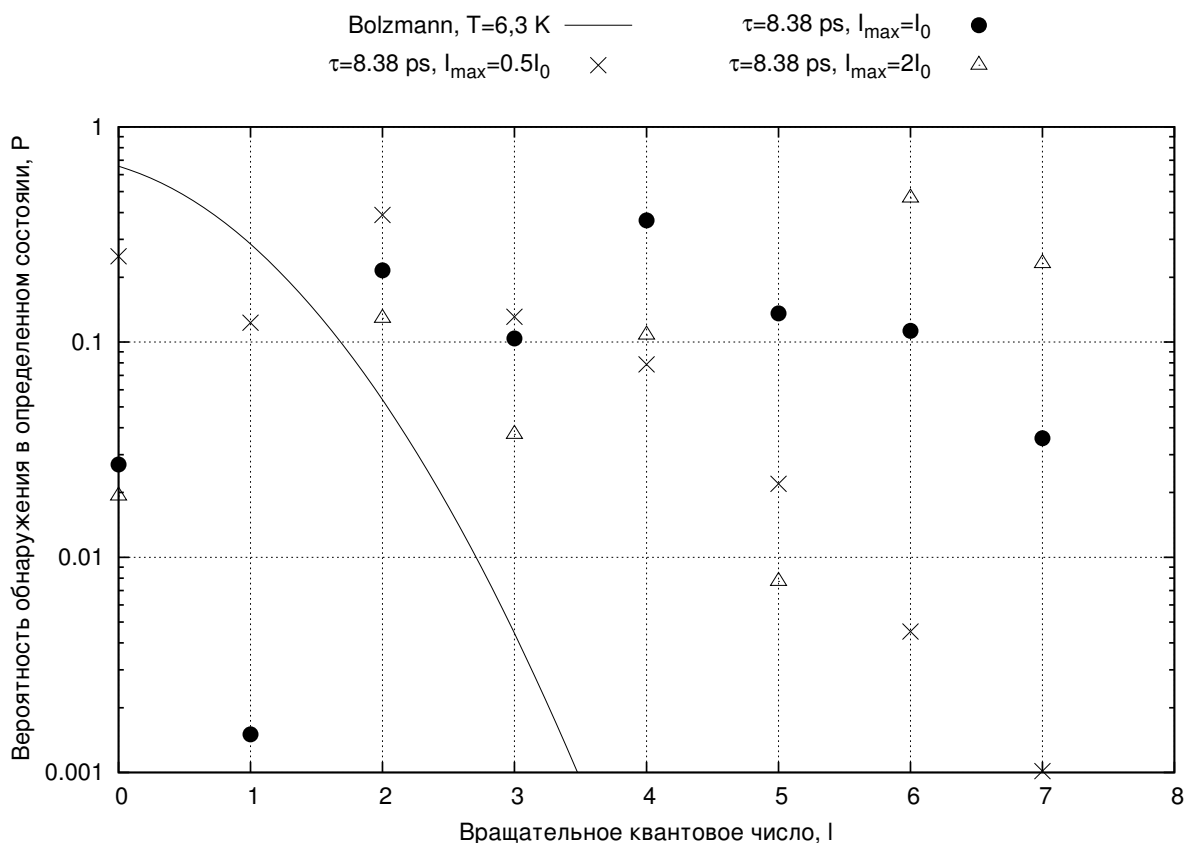


Рис. 1. Распределение вероятностей наблюдения молекул $^{14}N_2$ на различных вращательных уровнях l под действием группы лазерных импульсов с периодом $\tau = 8.38\text{ пс}$ (резонансный случай).

Сплошная линия обозначает начальное распределение молекул по вращательным квантовым состояниям – распределение Больцмана при температуре $T = 6.3\text{ K}$, символами «черные точки» – распределение, полученное при моделировании

воздействия семи импульсов с пиковой интенсивностью $I_0 = 5 * 10^{12}$ Вт/см² (данное значение интенсивности использовалось в экспериментах), символами «крестики» – распределение, полученное при моделировании воздействия семи импульсов с пиковой интенсивностью $I_0 = 2.5 * 10^{12}$ Вт/см², символами «белые треугольники» – распределение, полученное при моделировании воздействия семи импульсов с максимальной интенсивностью $I_0 = 10 * 10^{12}$ Вт/см².

Из анализа графиков следует, что последовательность из семи импульсов с периодом следования $\tau = 8.38$ пс возбуждает молекулы $^{14}\text{N}_2$ на высокие вращательные уровни ($l \geq 2$). После взаимодействия с группой ультракоротких лазерных импульсов распределение вероятностей молекул азота по вращательным состояниям не может быть сведено к распределению Больцмана при какой-либо температуре. Это указывает на нетепловой характер взаимодействия исследуемых молекул азота с полем лазерного излучения. Также наблюдается зависимость распределения вероятностей наблюдения молекул азота от интенсивности ультракоротких лазерных импульсов. При малой интенсивности (крестики) наибольшую вероятность наблюдения (≈ 0.39) имеет 2-ой возбужденный вращательный уровень; при интенсивности лазерного излучения, которая была использована в экспериментах [1, 2, 3], (закрашенные кружки) наибольшую вероятность наблюдения (≈ 0.37) имеет 4-ый возбужденный уровень; при вдвое большей интенсивности (треугольники) наибольшую вероятность наблюдения (≈ 0.47) имеет 6-ой вращательный уровень.

Данные результаты находятся в согласии с экспериментальными данными, представленными в работе [1].

Заключение

В работе предложен новый метод вычисления вероятностей переходов квантовых систем под действием электромагнитного поля излучения, вне рамок резонансного приближения и приближения вращающейся волны. Вероятности переходов представлены интегралами по траекториям в пространстве энергетических состояний. Предлагается итерационный алгоритм для проведения численного моделирования динамики квантовых систем, взаимодействующих с электромагнитным полем.

Разрабатываемый метод представляется перспективным для теоретического исследования динамики многоуровневых квантовых систем, индуцируемой внешним электромагнитным излучением.

Проведенное моделирование представляет интерес, так как позволяет находить параметры лазерного излучения, под действием которого наблюдается заселение определенных квантовых состояний исследуемых молекул азота $^{14}\text{N}_2$ и $^{15}\text{N}_2$, что может быть использовано при развитии технологий эффективного квантового когерентного контроля с высокой степенью селективности.

Литература

- [1] Zhdanovich, S. Quantum Resonances in Selective Rotational Excitation of Molecules with a Sequence of Ultrashort Laser Pulses / S. Zhdanovich, C. Bloomquist, J. Floss, I. Sh. Averbukh, J. W. Hepburn, V. Milner // *Phys. Rev. Lett.* – 2012. – Vol. 109. – P. 043003.
- [2] Floss, J. Anderson localization in laser-kicked molecules / J. Floss, Shm. Fishman, I. Sh. Averbukh // *Phys. Rev. A* – 2013. – Vol. 88. – P. 023426.
- [3] Floss, J. Quantum resonance, Anderson localization, and selective manipulations in molecular mixtures by ultrashort laser pulse / J. Floss, I. Sh. Averbukh // *Phys. Rev. A* – 2013. – Vol. 86. – P. 021401.
- [4] Фейнман, Р. Квантовая механика и интегралы по траекториям / Р. Фейнман, А. Хибс. – М.: Мир, 1968. – 382 с.
- [5] Фейнман, Р. Развитие пространственно-временной трактовки квантовой электродинамики // *УФН.* – 1967. – **91**. – 29-48.
- [6] Бiryukov, A.A. Описание динамики наносистем методом функционала влияния / А.А. Бiryukov, М.А. Шлеенков // *Наносистемы: Физика, Химия, Математика.* – 2012. – № 3(1). – С. 42-50.
- [7] Бiryukov, A.A. Описание динамики многоуровневых квантовых систем в сильных лазерных полях методом функционала влияния / А.А. Бiryukov, М.А. Шлеенков // *Известия Самарского научного центра Российской академии наук.* – 2012. – Т. 14. – № 4. – С. 236-242.
- [8] Бiryukov, A.A. Функциональный метод описания динамики квантовых систем, взаимодействующих с электромагнитным излучением / А.А. Бiryukov, М.А. Шлеенков // *Известия Самарского научного центра Российской академии наук.* – 2013. – Т. 15. – № 4. – С. 140-144.
- [9] Бiryukov, A.A. Описание динамики квантовых систем, взаимодействующих с лазерным излучением, методом функционала влияния / А.А. Бiryukov, М.А. Шлеенков // *Вестн. Сам. гос. техн. ун-та. Сер. Физ.-мат. науки.* – 2013. – Т. 15. – № 2(31). – С. 185-193.
- [10] Feynman, R. P. The Theory of a General Quantum System Interacting with a Linear Dissipative System / R. P. Feynman, F. L. Vernon, Jr. // *Annals of Physics.* – 1963. – Vol. 24. – № 1. – P. 118-173.
- [11] Бiryukov, A.A., Шлеенков М.А. Вычисление вероятностей переходов квантовой системы путем интегрирования вещественных функционалов // *Теоретическая физика.* – 2012. – Т. 13. – С. 8-41.