

ОГЛАВЛЕНИЕ

Введение	8
Глава 1. Атом в электромагнитном поле	12
1. Основы спектроскопии двухуровневого атома	12
1.1. Оператор Гамильтона заряженной частицы, находящейся в электромагнитном поле	12
1.2. Поперечное электромагнитное поле как совокупность фотонов	14
1.3. Взаимодействие атома со светом. Частота Раби.	18
1.4. Уравнения для амплитуд вероятности	20
1.5. Матрица плотности системы. Связь с амплитудами вероятности	23
2. Двухфотонный коррелятор «старт-стоп».	25
2.1. Измерение в режиме «старт-стоп» фотонов, испущенных одним атомом	25
2.2. Спонтанное испускание света. Временная эволюция формы линии флуоресценции.	27
2.3. Поглощение света атомом. Уравнения для амплитуд вероятности	32
2.4. Временная эволюция вероятностей при поглощении света.	35
2.5. Изменение со временем формы линии поглощения.	39
2.6. Выражение для коррелятора «старт-стоп»	40
3. Полный двухфотонный коррелятор	42
3.1. Что такое «полный» двухфотонный коррелятор.	42
3.2. Расщепление бесконечной цепочки связанных уравнений для амплитуд вероятности.	44
3.3. Формула для полного двухфотонного коррелятора. Переход к оптическим уравнениям Блоха	46
3.4. Связь между полным двухфотонным коррелятором и коррелятором старт-стоп.	49
3.5. Зависимость двухфотонных корреляторов от времени и частоты возбуждающего света	52
Глава 2. Фононы и туннельные системы полимеров и стекол	57
4. Адиабатическое взаимодействие электронов и ядер	57
4.1. Принципы теоретического описания взаимодействующих электронов и ядер	57
4.2. Франк-кондоновское (FC) и герцберг-теллеровское (HT) электронно-колебательное взаимодействие	59

5. Нормальные колебания твердых растворов	61
5.1. Акустические и оптические фононы	61
5.2. Локальные и квазилокальные колебания	66
6. Туннельные системы твердых растворов	74
6.3. Туннельные степени свободы в сложных молекулах и твердых матрицах	74
6.4. Кинетические уравнения для туннельной системы	77
6.5. Вероятности однофононных переходов в туннельных системах	80
6.6. Кинетика переходов в туннельных системах	83
6.7. Туннельные системы полимеров и стекол	86
6.8. Модель двухуровневых систем (ДУС). Туннелон. Туннелон-фононное и электрон-туннелонное взаимодействия	89
Глава 3. Обобщенный вектор Блоха	93
7. Матрица плотности примесного центра	93
7.1. Уравнения для амплитуд вероятности полной электрон-фонон-фотонной системы	93
7.2. Уравнения для матрицы плотности полной системы. Обобщенный вектор Блоха	98
7.3. Вывод оптических уравнений Блоха из уравнений для полной матрицы плотности	102
8. Счет фотонов в спектроскопии одиночного примесного центра	107
8.1. Двухфотонный коррелятор для двухуровневого примесного центра	107
8.2. Влияние триплетного уровня на люминесценцию одиночной молекулы. Группировка фотонов во времени	110
8.3. Двухфотонный и однофотонный метод счета. Флуктуации интенсивности флуоресценции	117
Глава 4. Динамическая теория формы электронно-колебательных полос примесных молекул	121
9. Динамическая теория электрон-фононных спектров	122
9.1. Сечение поглощения и вероятность испускания света примесным центром	122
9.2. Электрон-фононные оптические переходы в приближении Кондона и при нулевой температуре	124
9.3. Бесфононные линии (БФЛ) и фононные крылья (ФК)	126
9.4. Электрон-фононные оптические полосы при линейном FC-взаимодействии разной величины	132
9.5. Влияние температуры на перераспределение интенсивности в оптической полосе	136
10. Вибронные спектры сложных молекул	137
10.1. Вибронные спектры в приближении Кондона. Правило подобия в вибронных спектрах	138
10.2. Влияние герцберг-теллеровского взаимодействия на оптические полосы	140

10.3. Интерференция FC- и HT-амплитуд. Нарушение зеркальной симметрии полос поглощения и флуоресценции.	144
10.4. Применение теории для обработки реальных электрон-фононных полос и вибронных спектров	147
11. Влияние FC-взаимодействия на форму оптических полос. Динамическая теория уширения БФЛ	156
11.1. Совместное влияние линейного и квадратичного FC-взаимодействий на электронно-колебательные переходы	158
11.2. Франк-кондоновское электронно-колебательное взаимодействие	160
11.3. Выражение дипольного коррелятора через кумулянтную функцию	164
11.4. Квантовые фононные функции Грина	168
11.5. Температурное уширение и сдвиг БФЛ при произвольной силе связи с фононами	170
11.6. Влияние квадратичного FC-взаимодействия на ФК	177
11.7. Применение теории для обработки экспериментальных данных по фононным крыльям	181
11.8. Температурное уширение БФЛ. Сравнение с экспериментом	186
Глава 5. Релаксация наведенной поляризации в твердых телах.	
Фемтосекундное фотонное эхо	196
12. Когерентное излучение молекулярного ансамбля	196
12.1. Фазовая и энергетическая релаксация. Когерентное и некогерентное спонтанное излучение.	196
12.2. Сверхбыстрая оптическая дефазировка	200
13. Фотонное эхо	205
13.1. Взаимодействие атома с классическим электромагнитным полем. Эволюция атома в этом поле	205
13.2. Уравнения для матрицы плотности примесного центра, взаимодействующего с классическим электромагнитным полем	208
13.3. Элементарная теория двухимпульсного фотонного эха	211
13.4. Вектор Блоха. Эволюция вектора Блоха со временем	213
13.5. Теория экспоненциально затухающего двухимпульсного фотонного эха.	215
13.6. Трехимпульсное фотонное эхо	220
13.7. Долгоживущее фотонное эхо	224
13.8. Направленность распространения сигнала фотонного эха	227
14. Неэкспоненциальное фотонное эхо	229
14.1. Обобщенный вектор Блоха	229
14.2. Долгоживущее стимулированное фотонное эхо	232
14.3. Субпикосекундное стимулированное фотонное эхо.	238
14.4. Двухимпульсное фемтосекундное фотонное эхо	240
14.5. Сигнал трехимпульсного фотонного эха при произвольной длительности t_w времени ожидания	247

Глава 6. Теория формы оптической полосы примесного центра, взаимодействующего с ДУС	251
15. Стохастическая теория оптической полосы	251
15.1. Стохастическая теория Андерсона для оптической полосы	251
15.2. Обменная модель уширения спектральных линий	255
16. Динамическая теория формы электрон-туннельных полос	260
16.1. Туннельная функция Грина	260
16.2. Кумулянтная функция электрон-туннельной системы	262
16.3. Температурное уширение бестуннельной оптической линии	266
16.4. Дипольный коррелятор электрон-туннельной системы. Решение интегрального уравнения	269
16.5. Функция формы электрон-туннельной оптической полосы	271
Глава 7. Спектральная диффузия в оптических полосах примесных центров	274
17. Стохастический подход к проблеме спектральной диффузии	274
17.1. Стохастическая теория уширения оптической линии со временем	275
18. Динамический подход к проблеме спектральной диффузии	279
18.1. Гамильтониан электрон-фонон-туннельной системы	280
18.2. Уравнения для матрицы плотности электрон-фонон-туннельной системы	281
18.3. Спонтанные и светоиндуцированные переходы в ДУС	286
18.4. Взаимодействие хромофора с одной ДУС	289
18.5. Взаимодействие со множеством спонтанно туннелирующих ДУС	292
19. Динамическая теория спектральной диффузии	295
19.1. Коэффициент поглощения света хромофора, взаимодействующего с неравновесными ДУС	295
19.2. Зависимость полуширины бесфононной линии от времени	300
19.3. Логарифмический закон нарастания со временем скорости оптической дефазировки. Отклонения от логарифмического закона	304
Глава 8. Вероятность упругого и неупругого туннелирования в ДУС	310
20. Динамическая теория туннелирования в ДУС	310
20.1. Общие формулы для вероятности туннельных переходов	310
20.2. Неупругое туннелирование с рождением акустических и локализованных фононов	313
20.3. Упругое туннелирование в ДУС	317
Глава 9. Прыжки спектральных линий одиночных молекул	318
21. Исследование релаксации ДУС с помощью люминесценции одиночных молекул	318

21.1. Двухфотонный коррелятор молекулы, взаимодействующей с ДУС	318
21.2. Спонтанные и светоиндуцированные прыжки спектральной линии. Связь с выжиганием спектральных провалов и двухфотонным коррелятором	321
21.3. Анализ спектральных траекторий с помощью двухфотонного коррелятора	325
21.4. Исследование химических реакций на мономолекулярном уровне с помощью люминесценции одиночных молекул . . .	327
21.5. Проявление спектральной диффузии в двухфотонном корреляторе	328
21.6. Разнообразии локальной динамики индивидуальных молекул	330
21.7. Различная роль ДУС, сильно и слабо взаимодействующих с примесной молекулой	332
21.8. Отклонения от стандартной модели ДУС, найденные с помощью спектроскопии одиночных молекул	334
Заключение и основные результаты	337
Приложение 1. Вычисление функции $\gamma(\omega)$	342
Приложение 2. Вероятность испускания фотона	344
Приложение 3. Доказательство унитарности приближенных амплитуд . .	344
Приложение 4. Доказательство формул (3.8)	345
Приложение 5. Вывод формулы (3.24)	346
Приложение 6. Доказательство приближения, выражаемого формулами (7.16)	346
Приложение 7. Теорема Вика–Блоха–Доминисиса для бозонов	347
Приложение 8. Совместное влияние FC- и НТ-взаимодействия на форму оптической полосы	349
Приложение 9. Вывод кумулянтного разложения	353
Приложение 10. Связь между фононными функциями Грина основного и возбужденного состояний молекулы	355
Приложение 11. Преобразование выражения для сдвига линии	357
Приложение 12. Вычисление формулы (14.65).	358
Приложение 13. Теорема Вика–Блоха–Доминисиса для фермионов	359
Приложение 14. Доказательство формулы (16.53)	361
Приложение 15. Вывод формул (16.37) и (16.38)	362
Приложение 16. Вывод формул (16.61)	363
Приложение 17. Вычисление формулы (17.14)	364
Литература	365