

МИНИСТЕРСТВО ОБРАЗОВАНИЯ И НАУКИ РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ
ФЕДЕРАЛЬНОЕ АГЕНТСТВО ПО ОБРАЗОВАНИЮ
САНКТ-ПЕТЕРБУРГСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ ИНФОРМАЦИОННЫХ
ТЕХНОЛОГИЙ, МЕХАНИКИ И ОПТИКИ



ПОБЕДИТЕЛЬ КОНКУРСА ИННОВАЦИОННЫХ ОБРАЗОВАТЕЛЬНЫХ ПРОГРАММ ВУЗОВ

Н.Н. Розанов

НЕЛИНЕЙНАЯ ОПТИКА

**Часть I. Уравнения распространения излучения
и нелинейный отклик среды**



Санкт-Петербург

2008

УДК 538.56

Розанов Н.Н. Нелинейная оптика. Часть I. Уравнения распространения излучения и нелинейный отклик среды. – СПб: СПб ГУИТМО, 2008. – 95 с.

На основе уравнений Максвелла нелинейной электродинамики сплошных сред систематически изложены строгие и приближенные метода анализа распространения оптического излучения в нелинейных средах, а также методы нахождения нелинейного отклика среды на интенсивное излучение с включением актуальных вопросов нелинейной оптики (нелинейная оптика метаматериалов, квазиоптическое и непараксиальное приближения, нелинейная электродинамика электрон-позитронного вакуума). Включены задания для самостоятельного решения.

Пособие предназначено для студентов высших учебных заведений, обучающихся по направлению подготовки 200600 – Фотоника и Оптикоинформатика.

Рекомендовано УМО по образованию в области приборостроения и оптотехники в качестве пособия для студентов высших учебных заведений, обучающихся по направлению подготовки 200600 – Фотоники и Оптикоинформатики.



В 2007 году СПбГУ ИТМО стал победителем конкурса инновационных образовательных программ вузов России на 2007–2008 годы. Реализация инновационной образовательной программы «Инновационная система подготовки специалистов нового поколения в области информационных и оптических технологий» позволит выйти на качественно новый уровень подготовки выпускников и удовлетворить возрастающий спрос на специалистов в информационной, оптической и других высокотехнологичных отраслях экономики.

© Санкт-Петербургский
государственный университет
информационных технологий,
механики и оптики, 2008

© Н.Н. Розанов, 2008

Содержание

Глава 1. НЕЛИНЕЙНОЕ РАСПРОСТРАНЕНИЕ ИНТЕНСИВНОГО ОПТИЧЕСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ	5
1.1. Введение	5
1.2. Уравнения Максвелла для сплошных сред.....	7
1.3. Энергетические соотношения	11
1.4. Нелинейное волновое уравнение	13
1.5. Квазиоптическое уравнение для изотропной нелинейной среды	14
1.6. Квазиоптическое уравнение для анизотропных сред	19
1.7. Квазиоптическое уравнение для метаматериалов.....	22
1.8. Приближение слабой непараксиальности.....	24
Литература к главе 1	26
Глава 2. МАТЕРИАЛЬНЫЕ УРАВНЕНИЯ	27
2.1. Классические модели среды.....	27
2.1.1. Линейная модель Друде – Лоренца.....	28
2.1.2. Осцилляторы с квадратичной и кубической нелинейностью.....	30
Квадратичная нелинейность ($\kappa_3=0$), нерезонансный случай.....	31
Кубическая нелинейность ($\kappa_2=0$), резонансный случай	35
2.1.3. Другие осцилляторные модели.....	39
Модель связанных осцилляторов.....	39
Экситонные резонансы и пространственная дисперсия.....	40
Оптическая нелинейность наноструктур и метаматериалов	42
2.1.4. Ориентационная оптическая нелинейность	44
2.2. Квантовомеханическое вычисление нелинейной поляризуемости... 45	
2.2.1. Уравнение Шредингера.....	45
2.2.2. Оптическая нелинейность конденсата Бозе – Эйнштейна	49
2.3. Матрица плотности	50
2.3.1. Уравнение Неймана	50
2.3.2. Матрица плотности двухуровневой схемы и уравнения Блоха ..56	
2.3.3. Диполь-дипольное взаимодействие в наноструктурах	60
2.3.4. Теория возмущения для матрицы плотности.....	63
2.4. Линейные и нелинейные восприимчивости на основе матрицы плотности.....	70
2.4.1. Первый порядок теории возмущений	71
2.4.2. Второй порядок теории возмущений	73
2.4.3. Третий и высшие порядки теории возмущений	76
2.4.4. Фактор локального поля.....	79
2.5. Макромодели оптической нелинейности.....	80
2.6. Феноменологический подход.....	82
2.6.1. Линейный отклик среды.....	83
2.6.2. Нелинейные восприимчивости	88
Общие соотношения.....	88

Пространственная симметрия кристаллов	90
Фотоэлектрические нелинейности.....	92
2.7. Нелинейность и дисперсия электрон-позитронного вакуума.....	94
Литература к главе 2	96

Глава 1. НЕЛИНЕЙНОЕ РАСПРОСТРАНЕНИЕ ИНТЕНСИВНОГО ОПТИЧЕСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

1.1. Введение

Нелинейная оптика – раздел оптики, в котором изучается распространение оптического излучения в среде и его взаимодействие со средой в условиях, когда существенными становятся изменения оптических свойств среды под действием излучения. Сам термин «нелинейная оптика» предложен С.И. Вавиловым, который совместно с В.Л. Левшиным опубликовал в 1926 г. результаты экспериментов по уменьшению поглощения (просветлению) среды для интенсивного света [1]. К родственным предшествовавшим исследованиям можно было бы отнести и электрооптику, магнитооптику и т.д., в которых оптические свойства среды изменяются под действием статических или низкочастотных электрических и магнитных полей [2]. Если исключить из предмета статические поля, оставаясь в области чисто оптического воздействия на среду, то к нелинейно-оптическим явлениям следует причислить и эффекты оптической накачки и ориентации в газах и полупроводниках. Так, в случае атомарных газов резонансное оптическое возбуждение меняет распределение населенностей энергетических уровней среды, что может приводить к существенному изменению оптических характеристик среды. Например, среда вместо поглощающей может стать усиливающей – собственно оптическая накачка, или обладающей упорядоченным механическим и магнитным моментом атомов или электронов и ядер – оптическая ориентация. Эксперименты по оптической накачке ввиду резонансного характера взаимодействия не требуют больших интенсивностей оптического излучения и впервые были реализованы А. Кастлером в 1953 г. еще до появления лазеров [3].

Однако бурное развитие нелинейной оптики практически совпадает с появлением лазеров, интенсивное излучение которых способно вызывать заметный нелинейный отклик среды [4]. С практической точки зрения нелинейно-оптические явления позволяют, прежде всего, преобразовать характеристики лазерного излучения – его частоту, угловую расходимость, длительность импульса и ширину спектра. С их помощью можно также диагностировать среду в условиях, когда методы «линейной» спектроскопии неэффективны (нелинейная спектроскопия), и целенаправленно изменять саму структуру среды (лазерное охлаждение, силовая оптика, лазерная обработка материалов). С другой стороны, эти явления ограничивают возможности повышения мощности лазерных систем из-за оптического разрушения среды.

Нелинейно-оптические явления принципиально возможны в любых средах и даже в вакууме. Действительно, во-первых, в интенсивных полях происходит поляризация электрон-позитронного вакуума, ввиду чего последний подобно сплошной среде может характеризоваться нелинейной

восприимчивостью, дисперсией и т.д. Такие квантово-электродинамические эффекты могут наблюдаться уже при достигнутом уровне лазерного эксперимента (см. [5-7] и раздел 2.7). Во-вторых, сгустки оптического излучения обладают энергией, которой в духе общей теории относительности можно было бы сопоставить массу. Гравитационное взаимодействие различных световых сгустков или частей одного и того же сгустка также уподобляет вакуум нелинейно-оптической среде. Более точно, здесь следует учитывать, что гравитационное взаимодействие зависит не только от энергий сгустков, но и от соотношения между направлениями их распространения; в низшем приближении по интенсивности излучения гравитационное взаимодействие отсутствует для сгустков с одинаковым направлением распространения. Этот «нелинейно-оптический» механизм в обычных условиях крайне слаб и мог бы проявляться лишь в экстремальных астрофизических условиях [8]. Гораздо сильнее нелинейно-оптические явления в обычных средах, возникающие вследствие взаимодействия оптического (электромагнитного) излучения с электронами и ионами вещества. Этим случаем мы и будем, главным образом, далее ограничиваться.

В задачи нелинейной оптики входит, во-первых, теория изменения оптических свойств среды под действием излучения и, во-вторых, учет влияния такого изменения на характеристики распространяющегося в среде излучения. В общем плане нелинейная оптика сводится к теории взаимодействия электромагнитного излучения с веществом. Естественно, что эта задача должна включать теорию излучения и вещества по отдельности. Полное описание излучения с учетом квантовых эффектов достигается в рамках квантовой электродинамики [9], а последовательная теория вещества и его взаимодействия с излучением основывается на квантовомеханическом уравнении для матрицы плотности [10]. В случае интенсивного лазерного излучения, для которого число фотонов в основных модах много больше единицы, квантовой природой излучения обычно можно пренебречь. Тогда оправдан так называемый полуклассический подход, в котором излучение описывается классически, а вещество – квантовомеханически. Этот подход будет использован далее, причем во многих случаях будет привлекаться также классическое и феноменологическое описание нелинейно-оптических свойств среды. Изложение ограничено рамками нелинейной электродинамики сплошных сред, что отвечает достаточно большой концентрации частиц среды (см. ниже).

Естественно, что в рамках нелинейной оптики несправедлив широко используемый в линейной оптике принцип суперпозиции. Общая схема описания в большинстве рассматриваемых макроскопических задач следующая. Электромагнитное поле характеризуется вектором $\tilde{\mathbf{F}}(\mathbf{r}, t) = \{\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t), \tilde{\mathbf{H}}(\mathbf{r}, t)\}$, состоящим из векторов электрической ($\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t)$) и

магнитной ($\tilde{\mathbf{H}}(\mathbf{r},t)$) напряженностей поля (\mathbf{r} – трехмерный вектор координат, t – время). Уравнения Максвелла или их приближенный вариант для огибающих (амплитуд напряженностей) запишем в форме

$$\hat{\mathbf{A}}_1\{\tilde{\mathbf{F}},\tilde{\mathbf{G}}\}=0, \quad (1.1.1)$$

где $\hat{\mathbf{A}}_1$ – дифференциальный оператор, $\tilde{\mathbf{G}}$ – вектор характеристик среды, например $\tilde{\mathbf{G}}(\mathbf{r},t)=\{\tilde{\mathbf{D}}(\mathbf{r},t),\tilde{\mathbf{B}}(\mathbf{r},t)\}$, а $\tilde{\mathbf{D}}(\mathbf{r},t)$ и $\tilde{\mathbf{B}}(\mathbf{r},t)$ – электрическая и магнитная индукция среды. Последние описываются материальным уравнением вида

$$\hat{\mathbf{A}}_2\{\tilde{\mathbf{G}},\tilde{\mathbf{F}}\}=0. \quad (1.1.2)$$

В ряде случаев уравнение (2) удастся разрешить относительно $\tilde{\mathbf{G}}$:

$$\tilde{\mathbf{G}}=\hat{\mathbf{B}}_2\{\tilde{\mathbf{F}}\}. \quad (1.1.3)$$

Оператор $\hat{\mathbf{B}}_2$ содержит временные и пространственные производные, то есть отклик среды нелокален (пространственная дисперсия) и не мгновенен (частотная дисперсия). Тогда первое уравнение превращается в замкнутое уравнение относительно только полевых характеристик

$$\hat{\mathbf{A}}_2\{\tilde{\mathbf{F}}\}=0 \quad (1.1.4)$$

(в развернутом виде $\hat{\mathbf{A}}_1\{\tilde{\mathbf{F}},\hat{\mathbf{B}}_2\{\tilde{\mathbf{F}}\}\}=0$). Для слабой нелинейности (3) можно разложить в ряд по степеням поля. Ограничение линейными членами отвечает линейной оптике, членами 2-ой степени – квадратичной нелинейности, 3-ей степени – кубичной нелинейности и т.д. В резонансных условиях – при близости некоторых из частот излучения к собственным частотам переходов или колебаний среды – существенно, что среда обладает собственными степенями свободы, и выразить ее характеристики через характеристики электромагнитного поля не удастся. Тогда требуется совместное решение (1) и (2). Укажем также, что в ряде случаев принципиальное значение имеет наличие флуктуаций. Тогда в управляющие уравнения следует вводить случайные источники полей.

1.2. Уравнения Максвелла для сплошных сред

Согласно Лоренцу [2], макроскопические уравнения Максвелла для сплошной среды выводятся из микроскопических уравнений Максвелла в вакууме с зарядами. В связи с большим разнообразием сред, в том числе стремительно развивающейся технологии метаматериалов, целесообразно привести здесь этот вывод.

Микровеличины – напряженности поля \mathbf{E} и \mathbf{H} , плотность заряда ρ и тока \mathbf{j} – в вакууме помечаются индексом μ . Уравнения Максвелла в вакууме имеют вид (гауссова система единиц)

$$\text{rot}\mathbf{E}_\mu=-\frac{1}{c}\frac{\partial\mathbf{H}_\mu}{\partial t}, \quad (1.2.1)$$

$$\text{rot } \mathbf{H}_\mu = \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{E}_\mu}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \mathbf{j}_\mu. \quad (1.2.2)$$

$$\text{div } \mathbf{H}_\mu = 0, \quad (1.2.3)$$

$$\text{div } \mathbf{E}_\mu = 4\pi \rho_\mu. \quad (1.2.4)$$

При этом уравнение непрерывности электрического заряда

$$\frac{\partial \rho_\mu}{\partial t} + \text{div } \mathbf{j}_\mu = 0. \quad (1.2.5)$$

Усреднение проводится по физически бесконечно малым объемам V и временным интервалам 2τ (размер объема много больше межатомного расстояния, но много меньше характерного размера изменения поля, в том числе длины волны, или размера тела). Аналогично, временной интервал усреднения много больше характерного времени изменения микрополей, но много меньше времени изменения поля, в том числе оптического периода, и свойств среды. Среднее значение величины f определяется соотношением:

$$\langle f(\mathbf{r}, t) \rangle = f(\mathbf{r}_0, t_0) = \frac{1}{2\tau} \int_{t_0-\tau}^{t_0+\tau} d\tau \frac{1}{V} \int_V dV f(\mathbf{r}, t). \quad (1.2.6)$$

Конкретная форма объема V не существенна, можно считать, что это куб, включающий точку \mathbf{r}_0 .

Введя средние значения напряженностей полей

$$\mathbf{E} = \langle \mathbf{E}_\mu \rangle, \quad \mathbf{B} = \langle \mathbf{H}_\mu \rangle \quad (1.2.7)$$

и усреднив (1) и (3), сразу получаем

$$\text{rot } \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \quad (1.2.8)$$

$$\text{div } \mathbf{B} = 0. \quad (1.2.9)$$

Усреднение двух оставшихся уравнений Максвелла дает

$$\text{rot } \mathbf{B} = \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \langle \mathbf{j}_\mu \rangle, \quad (1.2.10)$$

$$\text{div } \mathbf{E} = 4\pi \langle \rho_\mu \rangle, \quad (1.2.11)$$

а из уравнения непрерывности (5) следует

$$\frac{\partial \langle \rho_\mu \rangle}{\partial t} + \text{div } \langle \mathbf{j}_\mu \rangle = 0. \quad (1.2.12)$$

Преобразование этих уравнений, в которые входят плотности заряда и тока, требует задания некоторых свойств среды. Будем разделять заряды на связанные (индекс b) и свободные (индекс f), в зависимости от того, локализовано ли их движение под действием полей пределами атома или молекулы, или же значительно превышает эти размеры.

$$\rho_\mu = \rho_b + \rho_f, \quad \mathbf{j}_\mu = \mathbf{j}_b + \mathbf{j}_f. \quad (1.2.13)$$

Будем считать, что заряды не переходят из одной группы в другую (тем самым мы исключаем из рассмотрения такие процессы как, например, ионизацию). Тогда уравнение непрерывности можно записать для каждой из двух групп

$$\frac{\partial \langle \rho_b \rangle}{\partial t} + \operatorname{div} \langle \mathbf{j}_b \rangle = 0, \quad \frac{\partial \langle \rho_f \rangle}{\partial t} + \operatorname{div} \langle \mathbf{j}_f \rangle = 0. \quad (1.2.14)$$

Введем вектор поляризованности (поляризации среды) \mathbf{P} (его смысл поясняется ниже) соотношением

$$\langle \rho_b \rangle = -\operatorname{div} \mathbf{P}. \quad (1.2.15)$$

Поскольку поляризованность \mathbf{P} пропорциональна плотности связанных зарядов, дополнительно считаем, что вне тела, где $\rho_b = 0$, будет и $\mathbf{P} = 0$.

Связь \mathbf{P} с ρ_b выражается оператором div по следующим причинам.

Проинтегрируем (15) по объему, охватывающему тело:

$$\int \langle \rho_b \rangle dV = -\int \operatorname{div} \mathbf{P} dV = -\oint_S \mathbf{P} dS = 0. \quad (1.2.16)$$

Здесь S – поверхность объема интегрирования. Это следствие (15) означает, что полный заряд в объеме поляризованной среды равен нескомпенсированному заряду на поверхности этого объема.

Теперь

$$\operatorname{div} \left\{ \langle \mathbf{j}_b \rangle - \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} \right\} = 0. \quad (1.2.17)$$

Так как $\operatorname{div} \operatorname{rot} \mathbf{V} = 0$ для любого вектора \mathbf{V} , то

$$\langle \mathbf{j}_b \rangle - \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} = c \operatorname{rot} \mathbf{M}, \quad (1.2.18)$$

где введен вектор намагниченности среды \mathbf{M} , смысл которого также следует выяснить отдельно. Теперь традиционно вводятся вектор электрической индукции \mathbf{D} и вектор магнитной напряженности \mathbf{H}

$$\mathbf{D} = \mathbf{E} + 4\pi \mathbf{P}, \quad \mathbf{H} = \mathbf{B} - 4\pi \mathbf{M}. \quad (1.2.19)$$

Положим также

$$\rho = \langle \rho_f \rangle, \quad \mathbf{j} = \langle \mathbf{j}_f \rangle. \quad (1.2.20)$$

Тогда оставшиеся два уравнения Максвелла примут вид

$$\operatorname{rot} \mathbf{H} = \frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \mathbf{j}, \quad (1.2.21)$$

$$\operatorname{div} \mathbf{D} = 4\pi \rho. \quad (1.2.22)$$

По смыслу введенной поляризованности и намагниченности вне вещества (в вакууме), где связанных зарядов нет, $\mathbf{P} = 0, \mathbf{M} = 0$. Рассматривая диэлектрик (без свободных зарядов), можно преобразовать выражение для дипольного момента $\mathbf{d} = \int_V dV \langle \rho_b \rangle \mathbf{r}$ к виду $\mathbf{d} = \int_V dV \mathbf{P}$ [2, 11]. Отсюда следует, что \mathbf{P} имеет смысл плотности электрического дипольного

момента связанных зарядов среды. Аналогично, \mathbf{M} имеет смысл плотности магнитного дипольного момента, так что магнитный момент объема V среды:

$$\mathbf{m} = \int \mathbf{M} dV = \frac{1}{2c} \int [\mathbf{r} \times \mathbf{j}_M] dV, \quad (1.2.23)$$

где $\mathbf{j}_M = c \operatorname{rot} \mathbf{M}$ – ток намагничения (связанных зарядов).

Фигурирующие в уравнениях Максвелла напряженности и индукции осциллируют с высокой (оптической) частотой. Чтобы подчеркнуть это обстоятельство и отличить эти величины от вводимых далее огибающих снабдим такие быстро осциллирующие величины знаком \sim :

$$\operatorname{rot} \tilde{\mathbf{E}} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \tilde{\mathbf{B}}}{\partial t}, \quad (1.2.24)$$

$$\operatorname{div} \tilde{\mathbf{B}} = 0, \quad (1.2.25)$$

$$\operatorname{rot} \tilde{\mathbf{H}} = \frac{1}{c} \frac{\partial \tilde{\mathbf{D}}}{\partial t} + \frac{4\pi}{c} \tilde{\mathbf{j}}, \quad (1.2.26)$$

$$\operatorname{div} \tilde{\mathbf{D}} = 4\pi \tilde{\rho}. \quad (1.2.27)$$

Соотношения (19) запишутся в виде

$$\tilde{\mathbf{D}} = \tilde{\mathbf{E}} + 4\pi \tilde{\mathbf{P}}, \quad \tilde{\mathbf{H}} = \tilde{\mathbf{B}} - 4\pi \tilde{\mathbf{M}}. \quad (1.2.28)$$

В отсутствие свободных зарядов и токов ($\tilde{\rho} = 0$, $\tilde{\mathbf{j}} = 0$) уравнения Максвелла принимают вид

$$\operatorname{rot} \tilde{\mathbf{E}} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \tilde{\mathbf{B}}}{\partial t}, \quad (1.2.29)$$

$$\operatorname{div} \tilde{\mathbf{B}} = 0, \quad (1.2.30)$$

$$\operatorname{rot} \tilde{\mathbf{H}} = \frac{1}{c} \frac{\partial \tilde{\mathbf{D}}}{\partial t}, \quad (1.2.31)$$

$$\operatorname{div} \tilde{\mathbf{D}} = 0. \quad (1.2.32)$$

Из фигурирующих в (24)-(32) величин плотность заряда ρ является скаляром, а $\tilde{\mathbf{E}}$, $\tilde{\mathbf{D}}$, $\tilde{\mathbf{P}}$, $\tilde{\mathbf{j}}$ и $\tilde{\mathbf{H}}$, $\tilde{\mathbf{B}}$, $\tilde{\mathbf{M}}$ – трехмерными векторами, компоненты которых линейно преобразуются при поворотах системы координат (мы не рассматриваем здесь более общие преобразования Лоренца между различными движущимися – инерциальными – системами отсчета). Между двумя последними группами векторов имеется существенное различие. Напомним, что различают *полярные* и *аксиальные векторы*. При зеркальном отражении направление полярных векторов не меняется, а для аксиальных векторов сменяется противоположным. Если \mathbf{V} – полярный вектор, то $\operatorname{rot} \mathbf{V}$ – аксиальный вектор; аксиальным вектором является и векторное произведение двух полярных векторов. Физический смысл имеет равенство векторов одного и того же типа. Поэтому уравнения Максвелла не допускают того, чтобы обе указанные группы были

полярными векторами. В уравнения Максвелла в вакууме без зарядов и токов электрическое и магнитное поля входят симметрично, так что любую из этих групп можно было бы отнести к полярным векторам, а другую – к аксиальным. Однако при наличии электрических зарядов, которые и составляют любую среду, ситуация меняется. Напомним, что на заряд q , движущийся в вакууме со скоростью \mathbf{v} , в электромагнитном поле с электрической напряженностью $\tilde{\mathbf{E}}$ и магнитной напряженностью $\tilde{\mathbf{H}}$ действует сила Лоренца

$$\tilde{\mathbf{F}} = q \left(\tilde{\mathbf{E}} + \frac{1}{c} [\mathbf{v} \times \tilde{\mathbf{H}}] \right). \quad (1.2.33)$$

Естественно, что силу $\tilde{\mathbf{F}}$ и скорость \mathbf{v} следует причислить к истинным (полярным) векторам, тогда из (33) следует, что $\tilde{\mathbf{E}}$ – полярный, а $\tilde{\mathbf{H}}$ – аксиальный вектор. В результате в уравнениях Максвелла $\tilde{\mathbf{E}}, \tilde{\mathbf{D}}, \tilde{\mathbf{P}}, \tilde{\mathbf{j}}$ являются полярными векторами, а $\tilde{\mathbf{H}}, \tilde{\mathbf{B}}, \tilde{\mathbf{M}}$ – аксиальными векторами. Различие между полярными и аксиальными векторами имеет важное значение при определении вида нелинейных оптических восприимчивостей (гл. 2).

1.3. Энергетические соотношения

В общем случае поток энергии в сплошной среде определяется вектором Пойнтинга

$$\tilde{\mathbf{S}} = \frac{c}{4\pi} [\tilde{\mathbf{E}} \times \tilde{\mathbf{H}}], \quad (1.3.1)$$

а закон сохранения энергии записывается в виде [2]

$$-\text{div} \tilde{\mathbf{S}} = \frac{1}{4\pi} \left(\tilde{\mathbf{E}} \frac{\partial \tilde{\mathbf{D}}}{\partial t} + \tilde{\mathbf{H}} \frac{\partial \tilde{\mathbf{B}}}{\partial t} \right). \quad (1.3.2)$$

В области прозрачности среды правая часть (2) интерпретируется как скорость изменения плотности энергии электромагнитного поля \tilde{U} , то есть

$$\frac{\partial \tilde{U}}{\partial t} = \frac{1}{4\pi} \left(\tilde{\mathbf{E}} \frac{\partial \tilde{\mathbf{D}}}{\partial t} + \tilde{\mathbf{H}} \frac{\partial \tilde{\mathbf{B}}}{\partial t} \right). \quad (1.3.3)$$

В линейной среде с диэлектрической проницаемостью ε_l и магнитной проницаемостью $\mu = 1$ в отсутствие дисперсии из (3) следует [2]

$$\tilde{U}_l = \frac{1}{8\pi} (\varepsilon_l \tilde{\mathbf{E}}^2 + \tilde{\mathbf{H}}^2). \quad (1.3.4)$$

Рассмотрим случай прозрачной изотропной оптически нелинейной среды. Если длительность импульса оптического излучения велика по сравнению со временем релаксации нелинейности и частотная дисперсия выражена слабо, то мгновенное значение электрической индукции

полностью определяется мгновенным значением электрической напряженности поля: $\tilde{\mathbf{D}} = \tilde{\mathbf{D}}(\tilde{\mathbf{E}})$. Положим

$$\tilde{\mathbf{D}} = \tilde{\mathbf{D}}_l + \tilde{\mathbf{D}}_{nl},$$

$$\tilde{\mathbf{D}}_{nl} = \tilde{\mathbf{D}}_3 + \tilde{\mathbf{D}}_5 + \dots = a_3(\tilde{\mathbf{E}}, \tilde{\mathbf{E}})\tilde{\mathbf{E}} + a_5(\tilde{\mathbf{E}}, \tilde{\mathbf{E}})^2\tilde{\mathbf{E}} + \dots = \sum_{n=1}^{\infty} a_{2n+1}(\tilde{\mathbf{E}}, \tilde{\mathbf{E}})^n \tilde{\mathbf{E}},$$

$$\tilde{U} = \tilde{U}_l + \tilde{U}_3 + \tilde{U}_5 + \dots \quad (1.3.5)$$

Тогда

$$\frac{\partial \tilde{U}_3}{\partial t} = \frac{1}{4\pi} \left(\tilde{\mathbf{E}} \frac{\partial \tilde{\mathbf{D}}_3}{\partial t} \right) = \frac{3a_3}{4\pi} (\tilde{\mathbf{E}}, \tilde{\mathbf{E}}) \left(\tilde{\mathbf{E}}, \frac{\partial \tilde{\mathbf{E}}}{\partial t} \right) \quad (1.3.6)$$

$$\tilde{U}_3 = \int^t \frac{\partial \tilde{U}_3}{\partial t} dt = \frac{3a_3}{16\pi} (\tilde{\mathbf{E}}, \tilde{\mathbf{E}})^2, \quad (1.3.7)$$

$$\frac{\partial \tilde{U}_{2n+1}}{\partial t} = \frac{1}{4\pi} \left(\tilde{\mathbf{E}} \frac{\partial \tilde{\mathbf{D}}_{2n+1}}{\partial t} \right) = \frac{a_{2n+1}}{4\pi} \frac{n + \frac{1}{2}}{n + 1} \frac{\partial}{\partial t} (\tilde{\mathbf{E}}, \tilde{\mathbf{E}})^{n+1}, \quad (1.3.8)$$

$$\tilde{U}_{2n+1} = \frac{a_{2n+1}}{4\pi} \frac{n + \frac{1}{2}}{n + 1} (\tilde{\mathbf{E}}, \tilde{\mathbf{E}})^{n+1}. \quad (1.3.9)$$

Энергия поля W в объеме V в среде без дисперсии

$$W = \int_V \tilde{U} dV. \quad (1.3.10)$$

Из (2) находим

$$\frac{dW}{dt} = - \int_V \operatorname{div} \tilde{\mathbf{S}} dV = - \int_{\Sigma} \tilde{\mathbf{S}} d\Sigma. \quad (1.3.11)$$

Это соотношение показывает, что скорость изменения энергии в области, ограниченной поверхностью Σ , определяется потоком энергии через эту поверхность (напомним, что среда считается прозрачной). Если поле локализовано так, что достаточно быстро убывает при удалении от области локализации ($R \rightarrow \infty$) и поверхность Σ выбрана так, что поле на ней достаточно мало ($R^2 S \rightarrow 0$), то правая часть (11) обращается в нуль, так что энергия поля не зависит от времени, $W = \text{const}$. Если же, например, имеется источник, непрерывно излучающий расходящиеся волны, то поле убывает на периферии столь медленно ($S \sim R^{-2}$), что правая часть (11) при $R \rightarrow \infty$ не убывает, а приближается к постоянной величине.

В традиционной нелинейной оптике спектр излучения состоит из набора разделенных узких линий, внутри каждой из которых дисперсия слаба, но различие оптических свойств существенно при переходе от одних линий к другим, например, от фундаментальной к высшим гармоникам. Учет соответствующей фильтрации высших гармоник требует изменения приведенных выражений для плотности

электромагнитной энергии в нелинейной среде в зависимости от конкретного вида нелинейности [12, 13].

1.4. Нелинейное волновое уравнение

Далее в этой главе мы сосредоточимся на уравнениях распространения излучения, не оговаривая форму материальных соотношений. Укажем только, что большинство естественных сред в оптической области являются немагнитными и для них с высокой точностью

$$\tilde{\mathbf{M}} = 0, \quad \tilde{\mathbf{B}} = \tilde{\mathbf{H}}. \quad (1.4.1)$$

Тогда из (1.2.24) и (1.2.26) следует волновое уравнение только для электрических величин:

$$\text{rot rot } \tilde{\mathbf{E}} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \tilde{\mathbf{D}}}{\partial t^2} = -\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial \tilde{\mathbf{j}}}{\partial t}. \quad (1.4.2)$$

Отметим, что не все решения (2) служат решениями уравнений Максвелла (1.2.24)-(1.2.27), поскольку эти решения могут не удовлетворять уравнению (1.2.27). Фактически соотношение (1.2.27) накладывает ограничения на поляризационную структуру излучения (см. ниже). Таким образом, при исключении из уравнений Максвелла магнитных величин к волновому уравнению (2) следует добавить (1.2.27).

Волновое уравнение можно преобразовать, воспользовавшись тождеством, справедливым для произвольного вектора \mathbf{V}

$$\text{rot rot } \mathbf{V} = \text{grad div } \mathbf{V} - \Delta \mathbf{V}. \quad (1.4.3)$$

Здесь Δ – оператор Лапласа, который в декартовых координатах x , y и z с ортами \mathbf{e}_x , \mathbf{e}_y и \mathbf{e}_z определяется соотношением

$$\begin{aligned} \Delta \mathbf{V} = & \left(\frac{\partial^2 V_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 V_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 V_x}{\partial z^2} \right) \mathbf{e}_x + \left(\frac{\partial^2 V_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 V_y}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 V_y}{\partial z^2} \right) \mathbf{e}_y + \\ & + \left(\frac{\partial^2 V_z}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 V_z}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 V_z}{\partial z^2} \right) \mathbf{e}_z. \end{aligned} \quad (1.4.4)$$

Тогда волновое уравнение (2) принимает вид

$$\Delta \tilde{\mathbf{E}} - \text{grad div } \tilde{\mathbf{E}} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \tilde{\mathbf{D}}}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial \tilde{\mathbf{j}}}{\partial t}. \quad (1.4.5)$$

В диэлектриках без свободных зарядов и токов из (5) следует

$$\Delta \tilde{\mathbf{E}} - \text{grad div } \tilde{\mathbf{E}} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \tilde{\mathbf{D}}}{\partial t^2} = 0. \quad (1.4.6)$$

На границах резкого раздела сред выполняются обычные условия непрерывности тангенциальных составляющих напряженностей \mathbf{E} и \mathbf{H} .

1.5. Квазиоптическое уравнение для изотропной нелинейной среды

В этом и следующем разделах мы рассмотрим восходящий к работам Леонтовича и Фока [14, 15] квазиоптический подход, называемый также методом медленно меняющихся амплитуд или параболического уравнения. Этот подход является основным в нелинейной оптике и широко используется далее. Здесь мы будем рассматривать распространение излучения в немагнитной среде ($\tilde{\mathbf{B}} = \tilde{\mathbf{H}}$, или магнитная проницаемость среды $\mu = 1$) без свободных зарядов и токов на основе уравнений (1.4.6) и (1.2.32). Еще одним важным свойством среды служит наличие существенной частотной дисперсии (пространственной дисперсией мы пренебрегаем). Из-за этого фактора поле может быть представлено в виде набора небольшого числа волновых пакетов (пучков-импульсов), каждый из которых близок к плоской монохроматической волне, то есть обладает высокой степенью монохроматичности и малой угловой расходимостью:

$$\tilde{\mathbf{E}} = \sum_j \operatorname{Re} \{ \mathbf{E}_j \exp(i\mathbf{k}_j \mathbf{r} - i\omega_j t) \}. \quad (1.5.1)$$

Здесь огибающая (амплитуда) \mathbf{E}_j считается меняющейся медленно и по координатам, и по времени по сравнению со скоростью изменения экспонент в (1). Аналогичные разложения следует написать и для электрической индукции среды. В литературе распространено и определение огибающей, вдвое отличающейся от даваемого (1):

$$\tilde{\mathbf{E}} = \sum_j \mathbf{E}_j \exp(i\mathbf{k}_j \mathbf{r} - i\omega_j t) + \text{к.с.}$$

(к.с. означает комплексное сопряжение). Мы предпочитаем определение (1), так как в этом случае, например, для монохроматического излучения \mathbf{E}_j имеет обычный смысл амплитуды оптических колебаний.

Хотя нелинейность среды расширяет набор частот ω_j и волновых векторов \mathbf{k}_j поля, например, за счет генерации высших гармоник, реально этот набор ограничивается именно вследствие дисперсии. Действительно, оптические свойства среды на основной частоте и частоте гармоник заметно отличаются, вследствие чего необходимые для эффективной генерации полей условия волнового синхронизма (см. ниже) обычно выполняются только для небольшого числа волн. По этой причине далее в этом разделе мы опустим суммирование по j в (1); в действительности квазиоптические уравнения для волн с различными индексами j связаны друг с другом через нелинейную поляризованность среды.

Не конкретизируя пока вида материального уравнения для индукции $\tilde{\mathbf{D}}$ или поляризованности (поляризации среды) $\tilde{\mathbf{P}}$, выделим в них невозмущенную или линейную по полю часть (индексы 0 или l) и малое возмущение

$$\begin{aligned}\tilde{\mathbf{D}} &= \tilde{\mathbf{D}}^{(l)} + \delta\tilde{\mathbf{D}}, \quad \tilde{\mathbf{P}} = \tilde{\mathbf{P}}^{(l)} + \delta\tilde{\mathbf{P}}, \\ \tilde{\mathbf{D}}^{(l)} &= \hat{\varepsilon}_0 \tilde{\mathbf{E}}, \quad \tilde{\mathbf{P}}^{(l)} = \frac{1}{4\pi} (\hat{\varepsilon}_0 - 1) \tilde{\mathbf{E}},\end{aligned}\tag{1.5.2}$$

$$\delta\tilde{\mathbf{D}} = \delta\hat{\varepsilon} \tilde{\mathbf{E}}, \quad \delta\tilde{\mathbf{P}} = \frac{1}{4\pi} \delta\hat{\varepsilon} \tilde{\mathbf{E}}.$$

Оператор $\hat{\varepsilon}_0$ отвечает однородной диэлектрической проницаемости среды в пределе слабых полей; в него удобно не включать поглощение или усиление среды, а также ее слабые неоднородности, относя их к возмущению $\delta\hat{\varepsilon}$. Если неоднородности не малы, то в низшем приближении следовало бы привлекать геометрическую оптику с криволинейным ходом лучей вместо отвечающих плоским волнам (1) прямых лучей. Операторный характер линейной диэлектрической проницаемости $\hat{\varepsilon}_0$ вызван частотной дисперсией среды и определяется следующими фурье-разложениями

$$\begin{aligned}\tilde{\mathbf{E}} &= \int \tilde{\mathbf{E}}_\omega \exp(-i\omega t) d\omega, \\ \hat{\varepsilon}_0 \tilde{\mathbf{E}} &= \int \varepsilon_0(\omega) \tilde{\mathbf{E}}_\omega \exp(-i\omega t) d\omega.\end{aligned}\tag{1.5.3}$$

В соответствии с приведенными выше оговорками $\varepsilon_0(\omega)$ – скалярная и вещественная функция частоты ω . Волновое уравнение (1.4.6) можно переписать в виде

$$\Delta \tilde{\mathbf{E}} - \text{grad div } \tilde{\mathbf{E}} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \hat{\varepsilon}_0 \tilde{\mathbf{E}} - \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \delta\tilde{\mathbf{P}}}{\partial t^2} = 0.\tag{1.5.4}$$

Теперь введем огибающие поля и поляризованности среды:

$$\begin{aligned}\tilde{\mathbf{E}} &= \text{Re} \{ \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \exp(ik_0 z - i\omega_0 t) \}, \\ \delta\tilde{\mathbf{P}} &= \text{Re} \{ \delta\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) \exp(ik_0 z - i\omega_0 t) \},\end{aligned}\tag{1.5.5}$$

$$k_0 = k(\omega_0), \quad k(\omega) = (\omega/c) \sqrt{\varepsilon_0(\omega)}.$$

Выбор направления преимущественного распространения излучения (ось z) и центральной частоты ω_0 отчасти произволен, поскольку небольшие изменения этих величин приводят к соответствующим изменениям огибающих. Сами огибающие считаются, как указывалось выше, медленно меняющимися функциями координат и времени, то есть

$$\omega_0 \tau_{fr} \ll 1, \quad r_{\parallel} \ll \lambda_0, \quad r_{\perp} \ll \lambda_0,\tag{1.5.6}$$

где τ_{fr} – ширина фронта импульса излучения или длительность импульса, r_{\parallel} и r_{\perp} – масштабы продольного (вдоль оси z) и поперечного изменения огибающей и $\lambda_0 = 2\pi/k_0$ – центральная длина волны излучения. Задача состоит в переходе от волнового уравнения (4) к уравнению для огибающих.

Ввиду малости нелинейной поляризованности и медленности изменения ее огибающей (на масштабе среднего оптического периода $2\pi/\omega_0$) последний член в левой части (4) можно представить в форме (пренебрежение второй временной производной от огибающей нелинейной поляризованности)

$$-\frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \delta \tilde{\mathbf{P}}}{\partial t^2} \approx \frac{4\pi}{c^2} \operatorname{Re} \left\{ \left(2i\omega_0 \frac{\partial \delta \mathbf{P}}{\partial t} + \omega_0^2 \delta \mathbf{P} \right) \exp[i(k_0 z - \omega_0 t)] \right\}. \quad (1.5.7)$$

Перейдем к огибающей в линейном по полю члене

$$-\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \epsilon_0 \tilde{\mathbf{E}} = \int k^2(\omega) \tilde{\mathbf{E}}_\omega \exp(-i\omega t) d\omega. \quad (1.5.8)$$

Поскольку спектр излучения сосредоточен в узкой области около центральной частоты ω_0 , можно разложить функцию $k^2(\omega) = k^2(\omega_0 + (\omega - \omega_0))$ в ряд Тейлора с сохранением квадратичных по частотному отклонению $\omega - \omega_0$ членов (второе приближение теории дисперсии). Тогда

$$-\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \epsilon_0 \tilde{\mathbf{E}} \approx \operatorname{Re} \left\{ \left(k_0^2 \mathbf{E} + 2i \frac{k_0}{v_{gr}} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} - D_2 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} \right) \exp[i(k_0 z - \omega_0 t)] \right\}. \quad (1.5.9)$$

Здесь введены групповая скорость v_{gr} и параметр квадратичной дисперсии D_2 (последняя величина будет уточнена далее):

$$\frac{1}{v_{gr}} = \left. \frac{dk}{d\omega} \right|_{\omega=\omega_0}, \quad D_2 = \left. \frac{1}{2} \frac{d^2 k^2}{d\omega^2} \right|_{\omega=\omega_0}. \quad (1.5.10)$$

В операторе Лапласа (первый член в левой части (4)) выделим поперечную и продольную составляющие:

$$\Delta \tilde{\mathbf{E}} = \Delta_\perp \tilde{\mathbf{E}} + \frac{\partial^2 \tilde{\mathbf{E}}}{\partial z^2}, \quad \Delta_\perp = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}. \quad (1.5.11)$$

Очевидно,

$$\Delta_\perp \tilde{\mathbf{E}} = \operatorname{Re} \left\{ \left(\frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial y^2} \right) \exp[i(k_0 z - \omega_0 t)] \right\} \quad (1.5.12)$$

и

$$\frac{\partial^2 \tilde{\mathbf{E}}}{\partial z^2} = \operatorname{Re} \left\{ \left(-k_0^2 \mathbf{E} + 2ik_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial z} + \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial z^2} \right) \exp[i(k_0 z - \omega_0 t)] \right\}. \quad (1.5.13)$$

Оценим предэкспоненциальные члены в (13). Первый из них в конечном уравнении сократится с первым членом в правой части (9), поэтому его можно не оценивать. Члены с производными оцениваются по правилу

$\frac{d^n y}{dx^n} \sim \frac{Y}{X^n}$, где Y – характерное значение y и X – характерный масштаб

изменения x . Тогда второй предэкспоненциальный член в (13) $\sim k_0 E / r_0$, а третий $\sim E / r_0^2$. Ввиду условий (6) последний член много меньше предыдущего и им можно пренебречь (более точно, для получения правильного вида коэффициента D_2 мы учтем его далее приближенно).

Поэтому

$$\frac{\partial^2 \tilde{\mathbf{E}}}{\partial z^2} \approx \text{Re} \left\{ \left(-k_0^2 \mathbf{E} + 2ik_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial z} \right) \exp[i(k_0 z - \omega_0 t)] \right\}. \quad (1.5.14)$$

Остается рассмотреть второй член в левой части (4). Для этого привлечем уравнение (1.2.32), откуда, при условии малости нелинейности $|\delta \varepsilon| \ll \varepsilon_0(\omega_0)$,

следует (операторным характером $\delta \varepsilon$ мы здесь пренебрегаем)

$$\text{div} \tilde{\mathbf{E}} \approx -\frac{1}{\varepsilon_0(\omega_0)} \tilde{\mathbf{E}} \text{grad} \delta \varepsilon. \quad (1.5.16)$$

Поэтому

$$\text{grad} \text{div} \{ \mathbf{E} \exp[i(k_0 z - \omega_0 t)] \} \approx -\frac{ik_0}{\varepsilon_0(\omega_0)} \mathbf{E} \text{grad} \delta \varepsilon \exp[i(k_0 z - \omega_0 t)] \mathbf{e}_z. \quad (1.5.17)$$

Этот член мал ввиду малости нелинейности и медленности ее пространственного изменения. Однако точнее не пренебречь им, а приравнять нулю проекцию этого вектора на поперечную плоскость.

Вводя проекцию на эту плоскость вектора электрического поля $\mathbf{E}_\perp = (E_x, E_y)$ и нелинейной поляризованности среды $\delta \mathbf{P}_\perp = (\delta P_x, \delta P_y)$ и используя приведенный выше вид отдельных членов (4), получим окончательно квазиоптическое уравнение:

$$2ik_0 \left(\frac{\partial \mathbf{E}_\perp}{\partial z} + \frac{1}{v_{gr}} \frac{\partial \mathbf{E}_\perp}{\partial t} \right) + \Delta_\perp \mathbf{E}_\perp - D_2 \frac{\partial^2 \mathbf{E}_\perp}{\partial t^2} + 4\pi \frac{k_0^2}{\varepsilon_0} \left(\delta \mathbf{P}_\perp + 2i \frac{1}{\omega_0} \frac{\partial \delta \mathbf{P}_\perp}{\partial t} \right) = 0. \quad (1.5.18)$$

Что касается продольной компоненты поля E_z , то с учетом (16) ее можно выразить через E_x и E_y :

$$E_z = \frac{i}{k_0} \text{div}_\perp \mathbf{E}_\perp = \frac{i}{k_0} \left(\frac{\partial E_x}{\partial x} + \frac{\partial E_y}{\partial y} \right). \quad (1.5.19)$$

Отсюда следует малость этой компоненты:

$$\left| \frac{E_z}{E} \right|^2 \sim \left(\frac{\lambda_0}{r_0} \right)^2 \ll 1. \quad (1.5.20)$$

Квазиоптическое уравнение (18), дополненное соответствующим материальным уравнением, описывает большую часть нелинейных эффектов при распространении излучения. Более точно, нелинейность среды $\delta \mathbf{P}_\perp$ фигурирует только в последних членах в левой части (18).

Первые члены в круглых скобках (18) отвечают линейному уравнению переноса

$$\frac{\partial \mathbf{E}_\perp}{\partial z} + \frac{1}{v_{gr}} \frac{\partial \mathbf{E}_\perp}{\partial t} = 0, \quad (1.5.21)$$

решение которого

$$\mathbf{E}_\perp(z, t) = \mathbf{f} \left(t - \frac{z}{v_{gr}} \right). \quad (1.5.22)$$

Здесь \mathbf{f} – произвольная функция, определяемая формой импульса во входном сечении, $\mathbf{f}(t) = \mathbf{E}_\perp(z=0, t)$. Это решение отвечает переносу импульсов излучения без каких-либо искажений формы с постоянной групповой скоростью v_{gr} , определяемой соотношением (10). Напомним,

что член $\Delta_\perp \mathbf{E}_\perp$ в (18) описывает дифракцию излучения, а член $-D_2 \frac{\partial^2 \mathbf{E}_\perp}{\partial t^2}$ – дисперсионные искажения формы импульса.

Нетрудно заметить, что коэффициент D_2 в форме (10) не обращается в нуль для среды без дисперсии. Формально отсюда следовал бы вывод о наличии в такой среде искажений формы импульсов даже в вакууме, что находится в явном противоречии с точным решением Даламбера одномерного волнового уравнения [16]. В действительности это обстоятельство связано с приближенным характером проделанных преобразований. Так, мы пренебрегали в (14) членом $\partial^2 \mathbf{E} / \partial z^2$. Мы можем уточнить наше рассмотрение с помощью (21):

$$\frac{\partial^2 \mathbf{E}_\perp}{\partial z^2} = \frac{\partial}{\partial z} \frac{\partial \mathbf{E}_\perp}{\partial z} \approx -\frac{1}{v_g} \frac{\partial}{\partial z} \frac{\partial \mathbf{E}_\perp}{\partial t} \approx \frac{1}{v_{gr}^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}_\perp}{\partial t^2}. \quad (1.5.23)$$

Тогда выражение для коэффициента квадратичной дисперсии D_2 примет вид

$$D_2 = \frac{1}{2} \frac{d^2 k^2}{d \omega^2} \Big|_{\omega=\omega_0} - \frac{1}{v_{gr}^2} = k_0 \frac{d^2 k}{d \omega^2} \Big|_{\omega=\omega_0}. \quad (1.5.24)$$

При таком определении для среды без дисперсии $D_2 = 0$.

Уравнение (18), в котором мы ограничились членами со вторыми временными производными, отвечает второму приближению теории дисперсии. Более точный учет частотной дисперсии привел бы к включению в (18) членов с более высокими временными производными. Такое уточнение требует, однако, определенной осторожности. Действительно, как мы видели на примере выражения для коэффициента квадратичной дисперсии, необходимо учитывать характер приближений при преобразовании и других членов исходного волнового уравнения (см. также раздел 1.8). Кроме того, повышение порядка дифференциального

уравнения (из-за включения членов с производными высших порядков с малыми коэффициентами) может приводить к нефизическим решениям, исключение которых требует применения так называемой *сингулярной теории возмущений* (см., например, [17]).

В основе квазиоптического уравнения лежит предположение о близости поля к плоской монохроматической волне с огибающей, которая, соответственно, медленно меняется при изменении времени и пространственных координат. В некоторых случаях удобно ослабить эти условия, ограничившись требованием медленности только временного изменения огибающей. Тогда вместо (1) следует записать $\tilde{\mathbf{E}} = \text{Re}\{\mathbf{E}\exp(-i\omega_0 t)\}$ и пренебрегать при преобразовании волнового уравнения (1.4.6) только членом $\partial^2 \mathbf{E} / \partial t^2$. Соответственно, в управляющем уравнении сохранится член $\partial^2 \mathbf{E} / \partial z^2$. Такой подход будет проиллюстрирован в следующей части Пособия.

Формулировка закона сохранения энергии в рамках квазиоптического подхода зависит от вида нелинейности и будет конкретизирована далее. Вид потока энергии приводится в следующей задаче.

Задание 1.1. Вывести вид среднего за оптический период потока энергии (вектора Пойнтинга) излучения с линейной поляризацией в квазиоптическом приближении.

Ответ. Поскольку излучение близко к плоской волне, то поток энергии направлен преимущественно вдоль той же оси z ,

$$\langle S_z \rangle = \frac{c}{4\pi} |E|^2. \quad (1.5.25)$$

Для поперечных компонент усредненного вектора Пойнтинга

$$\langle \mathbf{S}_\perp \rangle = \frac{c}{8\pi} \text{Im}(E^* \nabla_\perp E) = \frac{c}{8\pi} |E|^2 \nabla_\perp \Phi. \quad (1.5.26)$$

Здесь поле представлено в форме $\mathbf{E}_\perp = |E| \exp(i\Phi) \mathbf{e}_x$, так что Φ – фаза излучения.

1.6. Квазиоптическое уравнение для анизотропных сред

Рассматриваем немагнитную среду ($\tilde{\mathbf{B}} = \tilde{\mathbf{H}}$). Исходным служит уравнение (1.5.4), поперечную проекцию которого мы перепишем в виде

$$\Delta_\perp \tilde{\mathbf{E}}_\perp + \frac{\partial^2 \tilde{\mathbf{E}}_\perp}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \tilde{\mathbf{D}}_\perp^{(l)}}{\partial t^2} - \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \delta \tilde{\mathbf{P}}_\perp}{\partial t^2} - \text{grad}_\perp \text{div}_\perp \tilde{\mathbf{E}}_\perp - \text{grad}_\perp \frac{\partial \tilde{E}_z}{\partial z} = 0. \quad (1.6.1)$$

Здесь

$$\text{div}_\perp \tilde{\mathbf{E}}_\perp = \frac{\partial \tilde{E}_x}{\partial x} + \frac{\partial \tilde{E}_y}{\partial y}, \quad \text{grad}_\perp = \mathbf{e}_x \frac{\partial}{\partial x} + \mathbf{e}_y \frac{\partial}{\partial y}. \quad (1.6.2)$$

Как и в предыдущем разделе, задача состоит в переходе к уравнениям для огибающих \mathbf{E}_\perp . Вывод уравнения близок к приведенному в разделе (1.5).

Оценки значимости различных членов основываются на том, что в простейшем варианте квазиоптического уравнения для случая монохроматического излучения

$$2ik_0 \frac{\partial \mathbf{E}_\perp}{\partial z} + \Delta_\perp \mathbf{E}_\perp + 4\pi \frac{k_0^2}{\varepsilon_0} \delta \mathbf{P}_\perp = 0 \quad (1.6.3)$$

все члены для оценок считаются одного порядка величины $\sim E_\perp / r_\perp^2$, так что характерный масштаб продольного изменения огибающих $r_\perp \sim k_0 r_\perp^2$ ($\nabla_\perp \sim r_\perp^{-1}$, $\partial / \partial z \sim (k_0 r_\perp^2)^{-1}$) и $\delta P_\perp \sim E_\perp / (k_0 r_\perp)^2$. Для расширения области применимости уравнений мы включим в них также поправочные члены $\sim (k_0 r_\perp)^{-1} (E_\perp / r_\perp^2)$, пренебрегая членами более высокого порядка малости $\sim (k_0 r_\perp)^{-2} (E_\perp / r_\perp^2)$.

Не останавливаясь на совпадающих с предыдущими преобразованиях выражений вида $\Delta_\perp \tilde{\mathbf{E}}_\perp$, $\frac{\partial^2 \tilde{\mathbf{E}}_\perp}{\partial z^2}$ и т.д., отметим очевидное соотношение

$$-\text{grad}_\perp \text{div}_\perp \tilde{\mathbf{E}}_\perp = -\text{grad}_\perp \text{div}_\perp \mathbf{E}_\perp \exp(ik_0 z - i\omega_0 t). \quad (1.6.4)$$

Новым специфичным для анизотропной среды обстоятельством служит присутствие в третьем и последнем членах левой части (1) продольной компоненты электрического поля. Ее можно выразить через поперечные компоненты поля и их пространственные производные. Для этого запишем (1.2.32) в форме

$$\text{div}_\perp \mathbf{D}_\perp^{(l)} + ik_0 D_z^{(l)} + \frac{\partial D_z^{(l)}}{\partial z} + 4\pi \text{div}_\perp \delta \mathbf{P}_\perp = 0. \quad (1.6.5)$$

Члены этого уравнения имеют, соответственно, величину $\sim E_\perp / r_\perp$ (1-ый член), $\sim k_0 D_z^{(l)}$ (2-ой член), $\sim D_z^{(l)} / (k_0 r_\perp^2)$ (3-ий член) и $\sim D_z^{(l)} / (k_0^2 r_\perp^3)$ (последний член). Отсюда следует, что последний (нелинейный) член пренебрежимо мал по сравнению с первым членом. Сохраняя в этом соотношении только линейные члены, перепишем его в виде

$$E_3 = -\frac{1}{\varepsilon_{33}} \sum_{m=1}^2 \varepsilon_{3m} E_m + \frac{i}{k_0 \varepsilon_{33}} \sum_{m=1}^3 \frac{\partial}{\partial x_m} \sum_{l=1}^3 \varepsilon_{ml} E_l, \quad (1.6.6)$$

где $E_1 = E_x$, $E_2 = E_y$, $E_3 = E_z$, $x_1 = x$, $x_2 = y$, $x_3 = z$. Для рассматриваемых широких пучков основным в правой части (6) является первый член. Тогда, учитывая второй член как добавку и пренебрегая в нем малым членом с производной в продольном направлении, найдем

$$E_3 = -\frac{1}{\varepsilon_{33}} \sum_{m=1}^2 \varepsilon_{3m} E_m + \frac{i}{k_0} \sum_{m,l=1}^2 \alpha_{ml} \frac{\partial E_m}{\partial x_m}, \quad (1.6.7)$$

где

$$\alpha_{ml} = \frac{\varepsilon_{lm}\varepsilon_{33} - \varepsilon_{l3}\varepsilon_{3m}}{\varepsilon_{33}^2} \quad (m, l = 1, 2). \quad (1.6.8)$$

Для среды с пренебрежимо слабой анизотропией первый член в левой части (7) отсутствует, а во втором члене $\alpha_{ml} = \delta_{ml}$, так что в этом случае приходим к (1.5.19).

Ввиду анизотропии среды изменения возникают и в описывающем частотную дисперсию 3-м члене (1). Дисперсия определяется заданием фурье-разложений поля и электрической индукции (знак вещественной части опускается):

$$\tilde{\mathbf{E}} = \exp(ik_0 z) \int \mathbf{E}_{\delta\omega} \exp[-i(\omega_0 + \delta\omega)t] d\delta\omega, \quad (1.6.9)$$

$$\tilde{\mathbf{D}}^{(l)} = \exp(ik_0 z) \int \hat{\varepsilon}(\delta\omega) \mathbf{E}_{\delta\omega} \exp[-i(\omega_0 + \delta\omega)t] d\delta\omega.$$

Теперь

$$-\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \tilde{\mathbf{D}}^{(l)}}{\partial t^2} = \exp(ik_0 z) \int \hat{\mathbf{k}}^2(\delta\omega) \mathbf{E}_{\delta\omega} \exp[-i(\omega_0 + \delta\omega)t] d\delta\omega, \quad (1.6.10)$$

где введен тензор

$$\hat{\mathbf{k}}^2(\delta\omega) = \frac{(\omega_0 + \delta\omega)^2}{c^2} \hat{\varepsilon}(\delta\omega). \quad (1.6.11)$$

Разложение Тейлора этого тензора записывается в виде

$$\hat{\mathbf{k}}^2(\delta\omega) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} \hat{\mathbf{Q}}^{(n)} (\delta\omega)^n, \quad \hat{\mathbf{Q}}^{(n)} = \left. \frac{d^n \hat{\mathbf{k}}^2}{d(\delta\omega)^n} \right|_{\delta\omega=0}. \quad (1.6.12)$$

В частности, $\hat{\mathbf{Q}}^{(1)}$ представляет тензор обратной групповой скорости, а

$\hat{\mathbf{Q}}^{(2)}$ – тензор квадратичной дисперсии. Теперь (10) примет вид

$$-\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \tilde{\mathbf{D}}^{(l)}}{\partial t^2} = \sum_{n=0}^N \frac{i^n}{n!} \hat{\mathbf{Q}}^{(n)} \frac{\partial^n \tilde{\mathbf{E}}}{\partial t^n} \exp(ik_0 z - i\omega_0 t), \quad (1.6.13)$$

где целое число N указывает порядок теории дисперсии. В правой части (13) присутствуют продольные компоненты векторов $\mathbf{V}^{(j)} = \partial^j \mathbf{E} / \partial t^j$ ($j = 0, 1, 2, \dots$). Их можно выразить через поперечные компоненты этих же векторов, продифференцировав (7) j раз по времени:

$$V_3^{(j)} = -\frac{1}{\varepsilon_{33}} \sum_{m=1}^2 \varepsilon_{3m} V_m^{(j)} + \frac{i}{k_0} \sum_{m,l=1}^2 \alpha_{ml} \frac{\partial V_m^{(j)}}{\partial x_m}. \quad (1.6.14)$$

Тогда для поперечных компонент вектора $\hat{\mathbf{Q}}^{(n)} \mathbf{V}^{(j)}$ найдем ($p = 1, 2$)

$$(\hat{\mathbf{Q}}^{(n)} \mathbf{V}^{(j)})_p = \sum_{q=1}^2 \left(Q_{pq}^{(n)} - \frac{\varepsilon_{3q}}{\varepsilon_{33}} Q_{p3}^{(n)} \right) V_q^{(j)} + \frac{i}{k_0} Q_{p3}^{(n)} \sum_{m,n=1}^2 \alpha_{mn} \frac{\partial V_m^{(j)}}{\partial x_n}. \quad (1.6.15)$$

Применяя эти соотношения к (13), получим

$$\begin{aligned}
& -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 D_p^{(l)}}{\partial t^2} = \exp(ik_0 z - i\omega_0 t) \times \\
& \times \sum_{n=0}^N \frac{i^n}{n!} \sum_{q=1}^2 \left(Q_{pq}^{(n)} - \frac{\varepsilon_{3q}}{\varepsilon_{33}} Q_{p3}^{(n)} \right) \frac{\partial^n E_q}{\partial t^n} + \frac{i}{k_0} Q_{p3}^{(n)} \sum_{m,j=1}^2 \alpha_{mj} \frac{\partial^{n+1} E_m}{\partial x_j \partial t^n}.
\end{aligned} \tag{1.6.16}$$

Последний член левой части (1) имеет вид

$$-\text{grad}_\perp \frac{\partial \tilde{E}_z}{\partial z} = - \left(ik_0 \text{grad}_\perp E_z + \text{grad}_\perp \frac{\partial E_z}{\partial z} \right) \exp(ik_0 z - i\omega_0 t). \tag{1.6.17}$$

После подстановки сюда (7) и введения двумерного вектора $\boldsymbol{\varepsilon}_{3\perp} = (\varepsilon_{31}, \varepsilon_{32})$ найдем

$$ik_0 \text{grad}_\perp E_z = i \frac{k_0}{\varepsilon_{33}} \text{grad}_\perp (\boldsymbol{\varepsilon}_{3\perp}, \mathbf{E}_\perp) + \text{grad}_\perp \left(\sum_{m,j=1}^2 \alpha_{mj} \frac{\partial E_m}{\partial x_j} \right), \tag{1.6.18}$$

$$-\text{grad}_\perp \frac{\partial E_z}{\partial z} = \frac{1}{\varepsilon_{33}} \text{grad}_\perp \frac{\partial}{\partial z} (\boldsymbol{\varepsilon}_{3\perp}, \mathbf{E}_\perp). \tag{1.6.19}$$

В последнем выражении мы пренебрегли членом $\sim (k_0 r_\perp)^{-2} (E_\perp / r_\perp^2)$.

Суммируя полученные выражения, мы получаем окончательно квазиоптическое уравнение с поправочными членами:

$$\begin{aligned}
& 2ik_0 \frac{\partial \mathbf{E}_\perp}{\partial z} + \Delta_\perp \mathbf{E}_\perp - \text{grad}_\perp \text{div}_\perp \mathbf{E}_\perp + i \frac{k_0}{\varepsilon_{33}} \text{grad}_\perp (\boldsymbol{\varepsilon}_{3\perp}, \mathbf{E}_\perp) + \\
& + \sum_{p=1}^2 \mathbf{e}_p \sum_{n=0}^N \left[\frac{i^n}{n!} \sum_{q=1}^2 \left(\bar{Q}_{pq}^{(n)} - \frac{\varepsilon_{3q}}{\varepsilon_{33}} \bar{Q}_{p3}^{(n)} \right) \frac{\partial^n E_q}{\partial t^n} + \frac{i}{k_0} \bar{Q}_{p3}^{(n)} \sum_{m,j=1}^2 \alpha_{mj} \frac{\partial^{n+1} E_m}{\partial x_j \partial t^n} \right] + \\
& + \text{grad}_\perp \sum_{m,j=1}^2 \alpha_{mj} \frac{\partial E_m}{\partial x_j} + \frac{1}{\varepsilon_{33}} \text{grad}_\perp \frac{\partial}{\partial z} (\boldsymbol{\varepsilon}_{3\perp}, \mathbf{E}_\perp) + \frac{4\pi}{c^2} \left(\omega_0^2 \delta \mathbf{P}_\perp + 2i\omega_0^2 \frac{\partial \delta \mathbf{P}_\perp}{\partial t} \right) = 0.
\end{aligned} \tag{1.6.20}$$

Коэффициенты $\bar{Q}_{pq}^{(n)}$ совпадают с $Q_{pq}^{(n)}$ при $n \neq 0, 2$, при этом $\bar{Q}_{pq}^{(0)} = Q_{pq}^{(0)} - k_0^2 \delta_{pq}$, а различие между $\bar{Q}_{pq}^{(2)}$ и $Q_{pq}^{(2)}$ связано с обсуждавшимся в предыдущем разделе вкладом члена $\frac{\partial^2 \mathbf{E}_\perp}{\partial z^2}$, см. (1.5.24).

Уравнение (20) описывает, в частности, перемешивание поперечных компонент огибающей вследствие анизотропии среды. Для изотропной среды (20) сводится к (1.5.18).

1.7. Квазиоптическое уравнение для метаматериалов

Для естественных сред в оптической области магнитная проницаемость μ близка к единице, и это условие до сих пор мы считали выполненным. В последнее время развиваются технологии создания искусственных сред с произвольными значениями эффективной

магнитной проницаемости, в том числе отрицательными. В этом разделе мы выведем квазиоптическое уравнение, описывающее распространение монохроматического излучения в изотропном метаматериале с нелинейными диэлектрической проницаемостью ε и магнитной восприимчивостью μ :

$$\varepsilon = \varepsilon_0 + \delta\varepsilon(|\tilde{\mathbf{E}}|^2), \quad \mu = \mu_0 + \delta\mu(|\tilde{\mathbf{H}}|^2),$$

$$|\delta\varepsilon(|\tilde{\mathbf{E}}|^2)| \ll |\varepsilon_0|, \quad |\delta\mu(|\tilde{\mathbf{H}}|^2)| \ll |\mu_0|, \quad (1.7.1)$$

$$\text{Im } \varepsilon_0 = \text{Im } \mu_0 = 0.$$

Будем исходить из уравнений Максвелла для монохроматического излучения с частотой ω (комплексная форма записи):

$$i\omega\mu\tilde{\mathbf{H}} = c \text{rot } \tilde{\mathbf{E}}, \quad i\omega\varepsilon\tilde{\mathbf{E}} = -c \text{rot } \tilde{\mathbf{H}}. \quad (1.7.2)$$

Отсюда можно выразить $\tilde{\mathbf{H}}$ через $\tilde{\mathbf{E}}$ (с учетом зависимости $\delta\mu(|\tilde{\mathbf{H}}|^2)$), строго говоря, определение этой зависимости сводится к решению трансцендентного уравнения):

$$\tilde{\mathbf{H}} = -i \frac{c}{\omega\mu} \text{rot } \tilde{\mathbf{E}}. \quad (1.7.3)$$

С учетом этого соотношения получаем замкнутое уравнение для напряженности электрического поля

$$\text{rot} \left(\frac{1}{\mu} \text{rot } \tilde{\mathbf{E}} \right) = \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon \tilde{\mathbf{E}}, \quad (1.7.4)$$

или

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} \tilde{\mathbf{E}} + \Delta_{\perp} \tilde{\mathbf{E}} + \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon \mu \tilde{\mathbf{E}} - \text{grad div } \tilde{\mathbf{E}} - \mu \left[\text{grad} \left(\frac{1}{\mu} \right) \times \text{rot } \tilde{\mathbf{E}} \right] = 0. \quad (1.7.5)$$

В невозмущенной прозрачной линейной среде ($\delta\varepsilon = \delta\mu = 0$) решение имеет вид плоской волны с зависимостью напряженностей поля от z (в комплексной форме записи) вида $\exp(ikz)$, где волновое число $k = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}$, причем считается $\varepsilon_0 \mu_0 > 0$ (в противном случае распространение волны невозможно). Существенно, что напряженности электрического и магнитного поля связаны соотношениями

$$\tilde{\mathbf{H}} = \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} [\mathbf{e}_z \times \tilde{\mathbf{E}}], \quad |\tilde{\mathbf{H}}| = \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} |\tilde{\mathbf{E}}|. \quad (1.7.6)$$

Для вывода квазиоптического уравнения полагаем

$$\tilde{\mathbf{E}} = \text{Re} \{ \mathbf{E} \exp(ikz) \}, \quad \tilde{\mathbf{H}} = \text{Re} \{ \mathbf{H} \exp(ikz) \}. \quad (1.7.7)$$

В стандартных для квазиоптики приближениях получаем искомое уравнение в виде

$$2ik \frac{\partial}{\partial z} \mathbf{E}_{\perp} + \Delta_{\perp} \mathbf{E}_{\perp} + k^2 \left(\frac{\delta \varepsilon}{\varepsilon_0} + \frac{\delta \mu}{\mu_0} \right) \mathbf{E}_{\perp} = 0. \quad (1.7.8)$$

При этом без потери точности можно считать

$$\delta \mu = \delta \mu \left(\frac{\varepsilon_0}{\mu_0} |\tilde{\mathbf{E}}|^2 \right). \quad (1.7.9)$$

Замечание. Подход работы N. Lazarides, G.P. Tsironis. Phys. Rev. E. Vol. 71. 036614 (2005), в которой вводятся связанные квазиоптические уравнения для напряженностей электрического и магнитного полей, некорректен.

1.8. Приближение слабой непараксиальности

Хотя квазиоптический подход чрезвычайно плодотворен и позволяет решить большое число нелинейной оптики, область его применимости ограничена пучками сравнительно большой ширины (в единицах длины волны) и импульсами достаточно большой длительности (в единицах периода оптических колебаний). В то же время в ряде ситуаций такое предположение неприемлемо. Например, для сред с керровской самофокусировочной нелинейностью (см. гл. 2) квазиоптический подход описывает так называемый коллапс пучка с мощностью, превышающей критическую. При приближении к точке нелинейного фокуса максимальная интенсивность излучения стремится к бесконечности, а ширина пучка – к нулю. Понятно, что последнее обстоятельство нарушает условия применимости квазиоптического подхода и требует уточнения рассмотрения.

Непосредственное решение нелинейных уравнений Максвелла затруднительно и на сегодня практически возможно лишь для одномерной или двумерной геометрии (следующая часть Пособия). В данном разделе мы представим вывод более точного, чем квазиоптическое, уравнения распространения широких пучков монохроматического излучения в среде с кубичной нелинейностью, причем непараксиальные члены служат малой поправкой к основным параксиальным [18].

Вывод близок к представленному выше в разделах 1.5-1.7, но теперь мы учтем некоторые дополнительные члены. Исходим из тех же уравнений Максвелла и пренебрегаем для простоты частотной дисперсией. Среда вновь считается изотропной и немагнитной ($\mu = 1$). Положим вместо (1.5.5)

$$\tilde{\mathbf{E}} = \text{Re} \{ \mathbf{E}(\mathbf{r}_{\perp}, z) \exp(i\Gamma z - i\omega_0 t) \}. \quad (1.8.1)$$

Сдвиг постоянной распространения (Γ вместо k_0) удобен, например, для описания пространственных солитонов (следующая часть Пособия) с огибающей $\mathbf{E}_s(\mathbf{r}_{\perp})$, которая зависит только от поперечных координат

$\mathbf{r}_\perp = (x, y)$. Теперь точным следствием волнового уравнения служит соотношение

$$2i\Gamma \frac{\partial \mathbf{E}_\perp}{\partial z} + \frac{\partial^2 \mathbf{E}_\perp}{\partial z^2} + \Delta_\perp \mathbf{E}_\perp - (\Gamma^2 - k_0^2) \mathbf{E}_\perp + \frac{k_0^2}{c^2} \delta \mathbf{D}_\perp - \text{grad div } \mathbf{E} = 0. \quad (1.8.2)$$

Это уравнение незамкнуто относительно поперечных составляющих огибающей $\mathbf{E}_\perp = (E_x, E_y)$ из-за формы последнего члена в левой части (2).

Как и ранее, замкнутое уравнение может быть получено при использовании приближенного выражения для продольной компоненты E_z через \mathbf{E}_\perp вида (1.5.19). Тогда, пренебрегая членами высшего порядка по малому параметру непараксиальности $(k_0 r_\perp)^{-2}$, находим

$$2i\Gamma \frac{\partial \mathbf{E}_\perp}{\partial z} + \Delta_\perp \mathbf{E}_\perp - (\Gamma^2 - k_0^2) \mathbf{E}_\perp + \frac{k_0^2}{c^2} \delta \mathbf{D}_\perp = \mathbf{Q}_\perp. \quad (1.8.3)$$

Правая часть (3) представляет малую непараксиальную поправку вида $\mathbf{Q}_\perp = \mathbf{Q}_s + \mathbf{Q}_z$, причем в случае кубичной нелинейности среды вида (см. гл. 2)

$$\delta \mathbf{D} = \alpha (\mathbf{E}, \mathbf{E}^*) \mathbf{E} + \beta (\mathbf{E}, \mathbf{E}) \mathbf{E}^* \quad (1.8.4)$$

получим

$$\begin{aligned} \mathbf{Q}_s = & -\frac{1}{\varepsilon_0} \{ \alpha |\text{div}_\perp \mathbf{E}_\perp|^2 \mathbf{E}_\perp - \beta (\text{div}_\perp \mathbf{E}_\perp)^2 \mathbf{E}_\perp^* + \\ & + \text{grad}_\perp [\text{div}_\perp (\alpha |E_\perp|^2 \mathbf{E}_\perp + \beta E_\perp^2 \mathbf{E}_\perp^*)] - \\ & - \alpha \text{grad}_\perp [|E_\perp|^2 (\text{div}_\perp \mathbf{E}_\perp)] + \beta \text{grad}_\perp (E_\perp^2 \text{div}_\perp \mathbf{E}_\perp^*) \}, \\ \mathbf{Q}_z = & -\frac{\partial^2 \mathbf{E}_\perp}{\partial z^2} = \frac{1}{k_0^2} \left[\Delta_\perp - (\Gamma^2 - k_0^2) + \frac{k_0^2}{\varepsilon_0} \alpha |E_\perp|^2 \right] \times \\ & \times \left[\Delta_\perp \mathbf{E}_\perp - (\Gamma^2 - k_0^2) \mathbf{E}_\perp + \frac{k_0^2}{\varepsilon_0} (\alpha |E_\perp|^2 \mathbf{E}_\perp + \beta E_\perp^2 \mathbf{E}_\perp^*) \right] + \\ & + \frac{\alpha}{4\varepsilon_0} [(\Delta_\perp \mathbf{E}_\perp, \mathbf{E}_\perp^*) - (\Delta_\perp \mathbf{E}_\perp^*, \mathbf{E}_\perp)] \mathbf{E}_\perp + \\ & + \frac{\beta}{4\varepsilon_0} [2(\Delta_\perp \mathbf{E}_\perp, \mathbf{E}_\perp) \mathbf{E}_\perp^* - E_\perp^2 \Delta_\perp \mathbf{E}_\perp^* - (\Gamma^2 - k_0^2) E_\perp^2 \mathbf{E}_\perp^* + \\ & + \frac{k_0^2}{\varepsilon_0} (\alpha + 2\beta) |E_\perp|^2 E_\perp^2 \mathbf{E}_\perp^* - \frac{k_0^2}{\varepsilon_0} \beta |E_\perp|^4 \mathbf{E}_\perp]. \end{aligned} \quad (1.8.5)$$

В низшем (параксиальном, или квазиоптическом) приближении правая часть (3) обращается в нуль, $\mathbf{Q}_\perp = 0$, и тогда (3) сводится к варианту (1.5.18) для монохроматического излучения. Можно сказать, что параксиальный подход реализуется как предел при стремлении ширины пучка к бесконечности. В отличие от исходного волнового уравнения это

уравнение эволюционного типа с первой производной по z . Поэтому оно позволяет находить огибающую поля в любом сечении z , если она задана в исходном сечении $z = 0$. Одним из следствий непараксиальности служит повышение степени нелинейности. Так, если, как это принято в (4), $\delta\mathbf{D}$ – 3-го порядка по огибающей, то \mathbf{Q}_\perp содержит и члены 5-го порядка. Естественно, что их учет обоснован, если коэффициенты членов 5-го порядка в самой нелинейности $\delta\mathbf{D}$ достаточно малы. Учет непараксиальных эффектов принципиально важен в пограничных (вырожденных) ситуациях, когда даже малые поправки могут качественно изменять характер результата (например, устранение коллапса при самофокусировке в среде с керровской нелинейностью, см. следующую часть Пособия). Также в следующей части Пособия будут обсуждены особенности эволюционных уравнений в случае предельно коротких оптических импульсов.

Литература к главе 1

1. S.I. Wawilow, W.L. Lewschin. Z. Physik. 1926. № 35. P. 932.
2. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Электродинамика сплошных сред. М., Физматлит, 1982.
3. С. Cohen-Tannoudji, A. Kastler. Progress in Optics. 1966. Vol. 5. P. 1.
4. P. Franken, A. Hill, C. Peters, G. Weinreich. Phys. Rev. Lett. 1961. V. 7. № 3. P. 118.
5. Е.Б. Александров, А.А. Ансельм, А.Н. Москалев. ЖЭТФ. 1985. Т. 89. С. 1181.
6. Н.Н. Розанов. ЖЭТФ. 1993. Т. 103. № 6. С. 1996.
7. Н.Н. Розанов. ЖЭТФ. 1998. Т. 113. № 2. С. 513.
8. N.N. Rosanov. Phys. Vibration. 1999. Vol. 7. № 1. P. 28.
9. В.Б. Берестецкий, Е.М. Лифшиц, Л.П. Питаевский. Квантовая электродинамика. М., Наука, 1989.
10. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Квантовая механика. Нерелятивистская теория. М., Наука, 1989.
11. В.И. Денисов. Введение в электродинамику материальных сред. М., МГУ, 1989.
12. И.Р. Шен. Принципы нелинейной оптики. М., Физматлит, 1989.
13. Н.Н. Розанов, В.А. Смирнов. Опт. спектроск. 2004. Т. 97. № 4. С. 638.
14. М.А. Леонтович. Изв. АН СССР. Сер. физ. 1944. Т. 8. № 1. С. 16.
15. М.А. Леонтович, В.А. Фок. ЖЭТФ. 1946. Т. 16. № 7. С. 557.
16. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Теория поля. М., Физматлит. 1960.
17. Ф.Б. Васильева, В.Ф. Бутузов. Асимптотические разложения решений сингулярно возмущенных уравнений. М., Наука, 1973.
18. N.N. Rosanov. Spatial hysteresis and optical patterns. Springer, Berlin, 2002.

Глава 2. МАТЕРИАЛЬНЫЕ УРАВНЕНИЯ

Для замыкания приведенных в гл. 1 уравнений распространения излучения необходимо еще конкретизировать материальные уравнения, описывающие линейные и нелинейные оптические свойства среды и ее взаимодействие с излучением. Идеальным было бы задание квантовомеханического уравнения Шредингера или матрицы плотности (см. ниже п. 2.3) для составляющих среду элементов – электронов, ядер и ионов, – но такой путь на сегодня, как правило, нереалистичен из-за чрезвычайной сложности решения этих уравнений. Поэтому здесь рассматриваются два подхода. Первый связан с упрощенными моделями среды, включая классическую модель Друде – Лоренца (п. 2.1) и квантовомеханические модели (п. 2.2 – 2.4). Второй подход основан на макроскопических моделях (п. 2.5) и феноменологическом описании (п. 2.6). В заключении приведен вид нелинейных уравнений Максвелла, включающих материальные соотношения, для электрон-позитронного вакуума (п. 2.7); актуальность этого вопроса связана с прогрессом в получении высоких интенсивностей лазерного излучения.

2.1. Классические модели среды

Классические модели имеют ограниченную область применимости; в частности, отличие магнитной проницаемости естественных сред от единицы последовательно объясняет только квантовая теория. Однако они просты и по крайней мере качественно описывают многие аспекты линейного и нелинейного отклика среды на оптическое излучение.

В основной классической модели Друде – Лоренца (п. 2.1.1 и 2.1.2) среда представляется набором осцилляторов (молекул или, в случае искусственных метаматериалов, более сложных «элементарных блоков»). Наводимый излучением дипольный момент одного осциллятора $\tilde{\mathbf{d}} = -e\tilde{\mathbf{r}}$, где $-e < 0$ – заряд электрона и $\tilde{\mathbf{r}}$ – смещение электрона от положения равновесия. Поляризованность $\tilde{\mathbf{P}} = N_0\tilde{\mathbf{d}}$ для одинаковых молекул с концентрацией N_0 , или $\tilde{\mathbf{P}} = \sum_i N_i\tilde{\mathbf{d}}_i$ для различающихся молекул.

Концентрация молекул считается малой (нет диполь-дипольного взаимодействия, например, разреженный газ, поэтому можно не учитывать различия между локальным и действующим полем, см. ниже п. 2.3.3 и 2.4.4). Другие классические модели (п. 2.1.3 и 2.1.4) отвечают как молекулярным моделям среды (в том числе состоящей из анизотропных молекул с собственным дипольным моментом), так и метаматериалам, в которых «элементарная ячейка» состоит из столь большого числа молекул, что может рассматриваться классически.

2.1.1. Линейная модель Друде – Лоренца

Уравнение движения одного *линейного (гармонического) осциллятора* является конкретизацией второго закона Ньютона:

$$m\ddot{\mathbf{r}} = -m\gamma\dot{\mathbf{r}} - m\omega_0^2\mathbf{r} - e\tilde{\mathbf{E}}. \quad (2.1.1)$$

Здесь m – масса электрона, ω_0 – резонансная частота колебаний (линейный закон Гука), γ – коэффициент трения, пропорционального скорости ($0 < \gamma \ll \omega_0$). Скорость движения электрона много меньше скорости света, поэтому в *силе Лоренца* (1.2.33), с которой электромагнитное поле действует на электрон, достаточно сохранить только член $e\tilde{\mathbf{E}}$, пренебрегая воздействием магнитного поля (последнее проявляется в возникновении слабой квадратичной нелинейности [1]). Смещения электрона порядка размера атома или молекулы ($\sim 10^{-8}$ см), что много меньше длины волны оптического излучения ($\sim 10^{-5}$ см). Поэтому напряженность электрического поля $\tilde{\mathbf{E}}$ не зависит от координаты. Если среда состоит из одинаковых осцилляторов с концентрацией N_0 (однородное уширение), то из (1) находим материальное соотношение в виде ($\tilde{\mathbf{P}} = -N_0 e\tilde{\mathbf{r}}$ – поляризованность, точки сверху означают дифференцирование по времени):

$$\ddot{\tilde{\mathbf{P}}} + \gamma\dot{\tilde{\mathbf{P}}} + \omega_0^2\tilde{\mathbf{P}} = \frac{\omega_p^2}{4\pi}\tilde{\mathbf{E}}, \quad (2.1.2)$$

где введена *плазменная частота* ω_p соотношением

$$\omega_p^2 = \frac{4\pi N_0 e^2}{m}. \quad (2.1.3)$$

Для излучения с фиксированной (линейной) поляризацией достаточно рассмотреть скалярное уравнение

$$\ddot{\tilde{P}} + \gamma\dot{\tilde{P}} + \omega_0^2\tilde{P} = \frac{\omega_p^2}{4\pi}\tilde{E}. \quad (2.1.4)$$

Если среда состоит из набора осцилляторов с различающимися параметрами, например, резонансной частотой, то выражение для поляризации среды описывается интегралом

$$\tilde{P} = \int_{-\infty}^{+\infty} g(\omega_0)\tilde{P}(\omega_0) d\omega_0, \quad (2.1.5)$$

где введена весовая функция $g(\omega_0)$. Это уравнение представляет один из простейших вариантов материального уравнения для сплошных сред. Феноменологическая модель согласуется с последовательной квантовомеханической (см. ниже п. 2.2–2.4) в тех ситуациях, когда существенное значение имеет только один резонанс в среде, отвечающий электродипольному переходу. Если положить в (4) $\omega_0 = 0$, то это уравнение будет описывать оптические свойства плазмы (модель Друде).

Модель (4) обычно используется в рамках спектрального подхода, оправданного ввиду линейности задачи. Поле излучения разлагается в спектр монохроматических волн с помощью интеграла Фурье

$$\tilde{E}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} E_{\omega} \exp(i\omega t) d\omega, \quad E_{\omega} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}(t) \exp(-i\omega t) dt, \quad E_{-\omega} = E_{\omega}^*. \quad (2.1.6)$$

Аналогичным образом раскладывается поляризованность среды

$$\tilde{P}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} P_{\omega} \exp(i\omega t) d\omega. \quad (2.1.7)$$

Линейную восприимчивость среды $\chi^{(1)}(\omega)$, определяемую соотношением

$$P_{\omega} = \chi^{(1)}(\omega) E_{\omega}, \quad (2.1.8)$$

находим подстановкой (6) и (7) в (4):

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{\omega_p^2}{4\pi D(\omega)}, \quad D(\omega) = \omega_0^2 - i\gamma\omega - \omega^2. \quad (2.1.9)$$

Два простых нуля знаменателя последней дроби ω_{\pm} располагаются в нижней полуплоскости комплексной переменной ω :

$$\omega_{\pm} = -i\frac{\gamma}{2} \pm \tilde{\omega}_0, \quad \tilde{\omega}_0 = \sqrt{\omega_0^2 - \frac{\gamma^2}{4}}. \quad (2.1.10)$$

Этот вывод имеет общий характер, не ограниченный рассматриваемой моделью термодинамически равновесной среды, и отвечает принципу причинности. Из последнего, в свою очередь, вытекают *соотношения Крамерса – Кронига* [2] между вещественной и мнимой частями линейной восприимчивости. Так как ввиду (9) и (3) восприимчивость пропорциональна концентрации осцилляторов N_0 , то можно ввести не зависящую от концентрации *поляризуемость* осциллятора

$$\alpha^{(1)}(\omega) = \frac{1}{N_0} \chi^{(1)}(\omega) = \frac{e^2}{mD(\omega)}. \quad (2.1.11)$$

Поляризуемость характеризует отклик на излучение одиночного осциллятора.

Ввиду слабости затухания ($\gamma \ll \omega_0$) описываемый (9) отклик среды обладает резким резонансом при $\omega \approx \omega_0$, причем ширина резонанса $\sim \gamma \sim 10^9 \text{ с}^{-1}$. Комплексность восприимчивости, существенная вблизи резонанса, отвечает сдвигу фазы колебаний поляризованности по отношению к колебаниям поля. С другой стороны, это обстоятельство означает комплексность линейной диэлектрической проницаемости

$$\varepsilon^{(1)}(\omega) = 1 + 4\pi\chi^{(1)}(\omega) = 1 + \frac{\omega_p^2}{D(\omega)}, \quad (2.1.12)$$

то есть наличие частотной дисперсии у показателя преломления и коэффициента поглощения.

Задание восприимчивости среды не полностью эквивалентно заданию динамического материального уравнения (4). Действительно, для решения последнего нужно еще фиксировать начальные условия, отсутствующие в выражении (9). Фактически при переходе от (4) к (9) было учтено только установившееся решение (4) и игнорировалось свободное решение (4) (при $\tilde{E} = 0$), которое экспоненциально, со скоростью γ , затухает от некоторого исходного начального значения.

Ввиду линейности задачи знание восприимчивости (8) позволяет описать и отклик среды на импульс излучения произвольной формы. При этом начальные условия отвечают тому, что до падения импульса осцилляторы неподвижны. Заметим, что даже в случае коротких импульсов возбуждающего излучения затухание имеет принципиальное значение. Если пренебречь им, то после прохождения импульса осцилляторы колебались бы неограниченно долго и, соответственно, испускали в виде излучения бесконечную энергию.

Как мы видели, линейность задачи не означает, что излучение не меняет состояния среды. Напротив, излучение приводит к раскачке осцилляторов среды, наиболее выраженной вблизи резонансных частот. На отклик среды накладывается лишь требование его малости (линейности). В рамках данной модели полезно рассмотреть следующую задачу [3]. Пусть из вакуума на границу среды, моделируемой набором линейных осцилляторов, падают два коротких импульса, разделенные временным интервалом $\tau < \gamma^{-1}$. Первый импульс вызывает в среде осцилляции и потому меняет условия прохождения и отражения второго импульса. Оказывается, что при определенных условиях второй импульс не отражается от границы среды, хотя в отсутствие первого импульса имеет место обычное френелевское отражение. Однако, такой эффект не означает подлинного нелинейного взаимодействия импульсов. Его природа – интерференционная и отвечает взаимному гашению отраженного излучения второго импульса и излучения осцилляторов, продолжающегося в течение времени $\sim \gamma^{-1}$.

2.1.2. Осцилляторы с квадратичной и кубической нелинейностью

Теперь среда моделируется *ангармоническими осцилляторами*, так что «возвращающая сила» отвечает нелинейному закону Гука (сила не пропорциональна растяжению пружины, а содержит нелинейную составляющую). Считая нелинейность слабой, обобщим (4)

$$\ddot{\tilde{P}} + \gamma \dot{\tilde{P}} + \omega_0^2 \tilde{P} + \kappa_2 \tilde{P}^2 + \kappa_3 \tilde{P}^3 + \dots = \frac{\omega_p^2}{4\pi} \tilde{E}. \quad (2.1.13)$$

Слабость нелинейности отвечает условиям

$$\omega_0^2 \gg |\kappa_2 P|, |\kappa_3 P^2|. \quad (2.1.14)$$

При этом не обязательно требование $|\kappa_2| \gg |\kappa_3 P|$, так как, например, в газах (среда с центральной симметрией элементов) все коэффициенты с четными индексами $\kappa_{2m} = 0$.

Далее мы будем искать установившееся – периодическое или квазипериодическое – решение (13) (процессы установления здесь нас не интересуют).

Квадратичная нелинейность ($\kappa_3 = 0$), нерезонансный случай

Уравнение (13) принимает вид

$$\ddot{\tilde{P}} + \gamma \dot{\tilde{P}} + \omega_0^2 \tilde{P} + \kappa_2 \tilde{P}^2 = \frac{\omega_p^2}{4\pi} \tilde{E}. \quad (2.1.15)$$

Нерезонансность означает, что комбинации частот поля с (небольшими) целочисленными коэффициентами не близки к (кратной) частоте малых собственных колебаний ω_0 . В действительности такой вариант теории возмущений имеет ограниченную область применения, так как при больших целочисленных коэффициентах всегда может реализоваться резонансный случай (см. ниже). Поэтому рассмотрение справедливо только для не слишком больших времен. Моделью среды может служить кристалл с постоянной решетки a . Тогда коэффициент квадратичной нелинейности оценивается следующим образом: $\kappa_2 \sim \omega_0^2 / ea$.

Малым параметром является правая часть уравнения (слабое поле). Чтобы выделить степень малости, введем формальный малый параметр ξ , который в конце вычисления приравнивается единице

$$\ddot{\tilde{P}} + \gamma \dot{\tilde{P}} + \omega_0^2 \tilde{P} + \kappa_2 \tilde{P}^2 = \xi \frac{\omega_p^2}{4\pi} \tilde{E}. \quad (2.1.16)$$

Ищем решение в виде ряда по формальному параметру малости ($\xi \rightarrow 1$)

$$\tilde{P} = \xi \tilde{P}^{(1)} + \xi^2 \tilde{P}^{(2)} + \xi^3 \tilde{P}^{(3)} + \dots \quad (2.1.17)$$

Подставив (17) в (16) и собрав члены порядка ξ, ξ^2, ξ^3, \dots , получим цепочку линейных неоднородных уравнений

$$\ddot{\tilde{P}}^{(1)} + \gamma \dot{\tilde{P}}^{(1)} + \omega_0^2 \tilde{P}^{(1)} = \frac{\omega_p^2}{4\pi} \tilde{E}, \quad (2.1.18)$$

$$\ddot{\tilde{P}}^{(2)} + \gamma \dot{\tilde{P}}^{(2)} + \omega_0^2 \tilde{P}^{(2)} = -\kappa_2 [\tilde{P}^{(1)}]^2, \quad (2.1.19)$$

$$\ddot{\tilde{P}}^{(3)} + \gamma \dot{\tilde{P}}^{(3)} + \omega_0^2 \tilde{P}^{(3)} = -2\kappa_2 \tilde{P}^{(1)} \tilde{P}^{(2)}, \quad (2.1.20)$$

.....

$$\ddot{\tilde{P}}^{(m)} + \gamma \dot{\tilde{P}}^{(m)} + \omega_0^2 \tilde{P}^{(m)} = -\kappa_2 \sum_{l=1}^{m-1} \tilde{P}^{(l)} \tilde{P}^{(m-l)}, \quad m \geq 2. \quad (2.1.21)$$

Задание 2.1. Вывести соотношения (18)-(21) из (15) и (16).

Указание. Воспользоваться формулой для операций со степенными рядами, см. справочник: И.С. Градштейн, И.М. Рыжик. Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений. М., Физматлит, 1962.

Уравнения (18)-(21) следует решать последовательно, начиная с (18). Уравнение (18) совпадает с фигурирующим в линейной модели Друде – Лоренца (4), и его решение приводит к выражению для (линейного) показателя преломления среды (12). Правая часть уравнения m -го порядка определяется через найденные ранее величины (в более низких порядках теории возмущений).

Применим приведенные общие соотношения к случаю бигармонического возбуждения осциллятора

$$\tilde{E} = \frac{1}{2}[E_1 \exp(-i\omega_1 t) + E_2 \exp(-i\omega_2 t) + \text{к.с.}] \quad (2.1.22)$$

Уравнение (13) принимает форму

$$\ddot{\tilde{P}}^{(1)} + \gamma \dot{\tilde{P}}^{(1)} + \omega_0^2 \tilde{P}^{(1)} = \frac{\omega_p^2}{4\pi}[E_1 \exp(-i\omega_1 t) + E_2 \exp(-i\omega_2 t) + \text{к.с.}] \quad (2.1.23)$$

Частное (отвечающее установившимся колебаниям) решение неоднородного уравнения представим в форме

$$\tilde{P}^{(1)} = \frac{1}{2}[\chi^{(1)}(\omega_1)E_1 \exp(-i\omega_1 t) + \chi^{(1)}(\omega_2)E_2 \exp(-i\omega_2 t) + \text{к.с.}] \quad (2.1.24)$$

Линейные восприимчивости

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{\omega_p^2}{4\pi D(\omega)}, \quad D(\omega) = \omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega \quad (2.1.25)$$

Это отвечает линейной модели Друде – Лоренца (п. 2.1.1). Отметим следующее из (25) резонансное увеличение восприимчивости при приближении частоты излучения ω к собственной частоте осциллятора ω_0 .

Обратимся теперь к решению (19). В правой части (19)

$$\begin{aligned} [\tilde{P}^{(1)}]^2 = & \frac{1}{4}\{[\chi^{(1)}(\omega_1)]^2 E_1^2 \exp(-2i\omega_1 t) + [\chi^{(1)}(\omega_2)]^2 E_2^2 \exp(-2i\omega_2 t) + \\ & + 2\chi^{(1)}(\omega_1)\chi^{(1)}(\omega_2)E_1E_2 \exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t) + \\ & + 2\chi^{(1)}(\omega_1)[\chi^{(1)}(\omega_2)]^* E_1E_2^* \exp(-i(\omega_1 - \omega_2)t) + \\ & + |\chi^{(1)}(\omega_1)|^2 |E_1|^2 + |\chi^{(1)}(\omega_2)|^2 |E_2|^2 + \text{к.с.}\} \end{aligned} \quad (2.1.26)$$

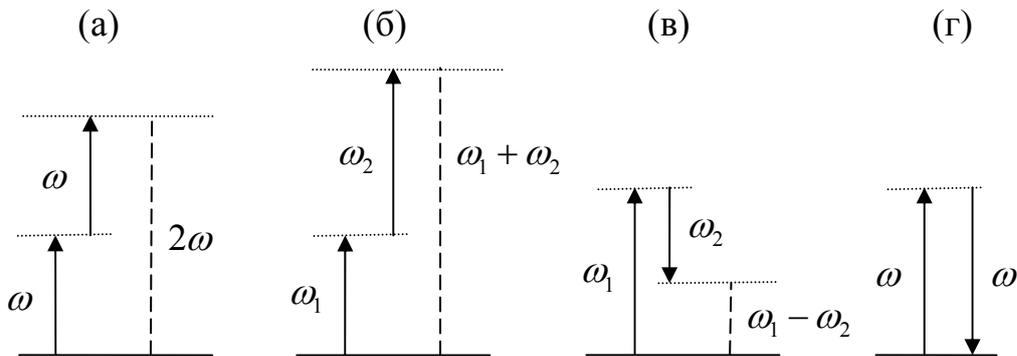
Соответственно, в установившемся режиме

$$\begin{aligned} \tilde{P}^{(2)} = & \frac{1}{2} \{ \chi^{(2)}(2\omega_1; \omega_1, \omega_1) E_1^2 \exp(-2i\omega_1 t) + \chi^{(2)}(2\omega_2; \omega_2, \omega_2) E_2^2 \exp(-2i\omega_2 t) + \\ & + \chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2) E_1 E_2 \exp(-i(\omega_1 + \omega_2)t) + \\ & + \chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2; \omega_1, \omega_2) E_1 E_2^* \exp(-i(\omega_1 - \omega_2)t) + \\ & + \chi^{(2)}(0; \omega_1, -\omega_1) |E_1|^2 + \chi^{(2)}(0; \omega_2, -\omega_2) |E_2|^2 + \text{к.с.} \}. \end{aligned} \quad (2.1.27)$$

Здесь

$$\begin{aligned} \chi^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) &= -\frac{1}{2} \kappa_2 \frac{[\chi^{(1)}(\omega)]^2}{D(2\omega)} = -\kappa_2 \frac{\omega_p^4}{2(4\pi)^2 D^2(\omega) D(2\omega)}, \\ \chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2) &= -\kappa_2 \frac{\chi^{(1)}(\omega_1) \chi^{(1)}(\omega_2)}{D(\omega_1 + \omega_2)}, \\ \chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2; \omega_1, \omega_2) &= -\kappa_2 \frac{\chi^{(1)}(\omega_1) \chi^{(1)*}(\omega_2)}{D(\omega_1 - \omega_2)}, \\ \chi^{(2)}(0; \omega, -\omega) &= -\frac{1}{2} \kappa_2 \frac{|\chi^{(1)}(\omega)|^2}{D(0)}. \end{aligned} \quad (2.1.28)$$

В этих коэффициентах квадратичной восприимчивости первый аргумент – частота колебаний поляризованности, а два последующих – частоты колебаний оптических полей (со знаками + или –). Соотношение частот иллюстрирует рис. 2.1, где знаки + и – отвечают противоположным вертикальным направлениям. Рисунок 2.1а отвечает первым строкам соотношений (27) и (28), то есть генерации в среде второй гармоники по отношению к исходной частоте оптического излучения. На рис. 2.1б и 2.1в иллюстрируется, соответственно, генерация в среде суммарной и разностной частот. Наконец, рис. 2.1г отвечает «оптическому выпрямлению» – генерации в среде электростатического поля под действием оптического излучения. Рисунок 2.1а можно получить из рис. 2.1б, а рис. 2.1г – из рис. 2.1в в пределе совпадающих частот. Наглядно рис. 2.1 (и последующий рис. 2.2) можно интерпретировать на квантовом языке как генерацию в среде фотонов с суммарными или разностными частотами, см. также ниже раздел 2.4.



$$\omega + \omega = 2\omega \qquad \omega_1 + \omega_2 \qquad \omega_1 - \omega_2 \qquad \omega - \omega = 0$$

Рис. 2.1. Соотношение частот колебаний квадратичной поляризованности среды (штриховые вертикальные линии) и оптических полей (сплошные вертикальные линии); $\omega = \omega_1$ или ω_2 .

Задание 2.2. Проследить переход в выражениях (26), (27) к пределу $\omega_1 \rightarrow \omega_2$.

Как видно из (28), квадратичные восприимчивости увеличиваются резонансным образом при приближении частоты наведенных осцилляций среды к собственной частоте осцилляторов. Заметим, правда, что наше рассмотрение было ограничено нерезонансным случаем, поэтому здесь речь идет только о тенденции. Связь (28) между линейными и квадратичными восприимчивостями может быть представлена в виде

$$\frac{\chi^{(2)}(\omega_1 \pm \omega_2, \omega_1, \omega_2)}{\chi^{(1)}(\omega_1 \pm \omega_2)\chi^{(1)}(\omega_1)\chi^{(1)}(\omega_2)} = -\frac{2\pi\kappa_2}{\omega_p^2}. \quad (2.1.29)$$

Существенно, что правая часть (29) не зависит от частоты. Поскольку для различных оптических сред значения плазменной частоты ω_p и коэффициента ангармонизма κ_2 варьируются не сильно, это позволяет сформулировать так называемое *правило Миллера*

$$\frac{\chi^{(2)}(\omega_1 \pm \omega_2, \omega_1, \omega_2)}{\chi^{(1)}(\omega_1 \pm \omega_2)\chi^{(1)}(\omega_1)\chi^{(1)}(\omega_2)} \approx const. \quad (2.1.30)$$

Как и для линейной восприимчивости, полюса (нули знаменателей) квадратичных восприимчивостей (28) лежат в нижней полуплоскости комплексной плоскости частот. Это также приводит к соотношениям типа Крамерса – Кронига между вещественными и мнимыми частями квадратичной восприимчивости [1].

Согласно (20), в следующем (третьем) порядке теории возмущений поляризованность кубична по амплитудам излучения. Спектр ее осцилляций включает вторую и третью гармоники, а также частоты, совпадающие с исходными частотами излучения. Смысл их мы поясним в следующем разделе, поскольку ряд возникающих при этом эффектов не может быть рассмотрен в рамках принятого нерезонансного приближения.

Задание 2.3. Решением уравнения (20) найти восприимчивости третьего порядка.

Задание 2.4. Для линейного осциллятора найти квадратичные восприимчивости при учете магнитной составляющей силы Лоренца.

Указание. Влияние магнитного поля учитывать как малое возмущение.

Кубическая нелинейность ($\kappa_2 = 0$), резонансный случай

Если «восстанавливающая сила» меняет знак при изменении знака отклонения осциллятора (соответственно, потенциал – четная функция отклонения), то члены с четными степенями \tilde{P} в (13) отсутствуют и низшим нелинейным членом служит кубический. Соответственно, при слабой нелинейности и монохроматическом возбуждении с частотой ω (13) можно записать в форме

$$\ddot{\tilde{P}} + \gamma \dot{\tilde{P}} + \omega_0^2 \tilde{P} + \kappa_3 \tilde{P}^3 = \frac{\omega_p^2}{4\pi} E \cos(\omega t). \quad (2.1.31)$$

Без ограничения общности огибающую можно считать вещественной, $E > 0$. Это уравнение носит название уравнения Дуффинга. Хотя его точное решение отсутствует, разработаны эффективные методы его приближенного решения.

Как и в рассмотренном выше случае квадратичной нелинейности, можно воспользоваться нерезонансным приближением. При монохроматическом возбуждении рис. 2.1 заменяется на следующие схемы:

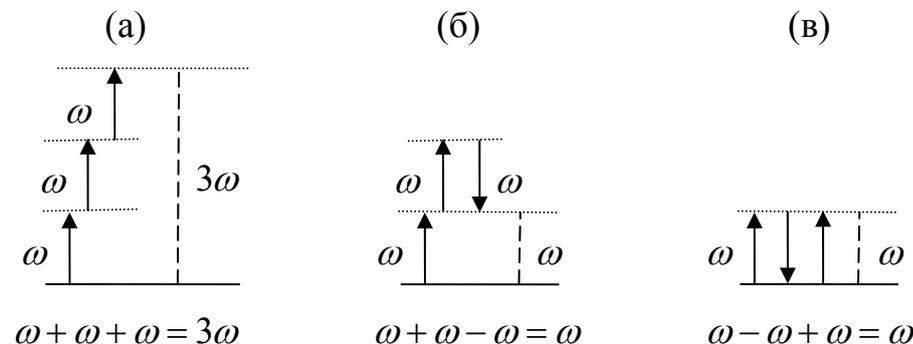


Рис. 2.2. Соотношение частот излучения (сплошные вертикальные линии) и поляризованности (штриховые вертикальные линии)

Рисунок 2.2а отвечает уже известной нам генерации гармоники, на этот раз третьей. Новыми свойствами обладает иллюстрируемый рис. 2.2б и 2.2в механизм нелинейности – для него частота колебаний поляризованности совпадает с частотой возбуждающего излучения. Этот тип нелинейности отвечает *самовоздействию*; можно убедиться (следующая часть Пособия), что он может быть описан в терминах нелинейного (зависящего от интенсивности) показателя преломления. Далее в этом разделе мы остановимся на характерной для резонансного возбуждения ситуации, которая принципиально не может быть описана

стандартной теорией возмущений, но эффективно трактуется в рамках метода медленно меняющейся огибающей; здесь мы ограничимся только анализом установившихся решений.

Малыми параметрами в (31) являются амплитуда колебаний осциллятора E , коэффициент затухания γ и частотная расстройка $|\omega - \omega_0|$. Перепишем (31) в форме, где в левой части стоит невозмущенная система, а в правой части малое возмущение:

$$\ddot{\tilde{P}} + \omega^2 \tilde{P} = Q(\tilde{P}, t) \equiv -\gamma \dot{\tilde{P}} + (\omega^2 - \omega_0^2) \tilde{P} - \kappa_3 \tilde{P}^3 + \frac{\omega_p^2}{4\pi} E \cos \omega t. \quad (2.1.32)$$

Теория возмущений отвечает разложению с формальным малым параметром ξ , который вновь в конечных выражениях приравнивается единице

$$\tilde{P} = \tilde{P}_0 + \xi \tilde{P}_1 + \dots \quad (2.1.33)$$

Подстановка (33) в (32) приводит к цепочке линейных уравнений

$$\ddot{\tilde{P}}_n + \omega^2 \tilde{P}_n = Q_n(\tilde{P}_0, \tilde{P}_1, \dots, \tilde{P}_{n-1}, t). \quad (2.1.34)$$

Нулевой порядок ($Q_0 = 0$) отвечает линейному осциллятору без затухания:

$$\ddot{\tilde{P}}_0 + \omega^2 \tilde{P}_0 = 0. \quad (2.1.35)$$

Общее решение (35) имеет вид

$$\tilde{P}_0 = p \cos(\omega t + \varphi). \quad (2.1.36)$$

Амплитуда p и фаза φ колебаний пока не известны. Условие малости параметров формулируется в виде соотношений

$$\omega_0^2 p \gg \gamma \omega_0 p \sim |\omega - \omega_0| \omega_0 p \sim |\kappa_3 p^3| \sim \frac{\omega_p^2}{4\pi} E. \quad (2.1.37)$$

Уравнение первого порядка теории возмущений

$$\ddot{\tilde{P}}_1 + \omega^2 \tilde{P}_1 = Q_1, \quad (2.1.38)$$

где

$$Q_1 = q_s \sin(\omega t + \varphi) + q_c \cos(\omega t + \varphi) + q_3 \cos(3(\omega t + \varphi)),$$

$$q_s = \gamma \omega_0 p + \frac{\omega_p^2}{4\pi} E \sin \varphi, \quad q_c = (\omega^2 - \omega_0^2 - \frac{3}{4} \kappa_3 p^2) p + \frac{\omega_p^2}{4\pi} E \cos \varphi, \quad q_3 = -\frac{1}{4} \kappa_3 p^3. \quad (2.1.39)$$

Правая часть (38), играющая роль раскачивающей осциллятор силы, состоит из резонансной (с коэффициентами q_s и q_c) и нерезонансной (с коэффициентом q_3) составляющих. Ввиду линейности уравнения (38) вклад этих составляющих можно рассматривать по-отдельности. Уравнение для нерезонансной составляющей

$$\ddot{\tilde{P}}_1 + \omega^2 \tilde{P}_1 = q_3 \cos[3(\omega t + \varphi)] \quad (2.1.40)$$

имеет решение, отвечающее генерации третьей гармоники:

$$\tilde{P}_{13} = -\frac{q_3}{8\omega^2} \cos[3(\omega t + \varphi)]. \quad (2.1.41)$$

Амплитуда гармоники пока неизвестна, так как в величину q_3 входит еще не определенная амплитуда колебаний осцилляторов p . Чтобы найти ее, заметим, что описываемый (38) линейный осциллятор без затухания раскачивался бы резонансной силой до неограниченно больших амплитуд. Поэтому периодическое решение (38) возможно только в отсутствие резонанса, то есть при условиях

$$q_s = 0, \quad q_c = 0, \quad (2.1.42)$$

откуда

$$\begin{aligned} \gamma\omega_0 p &= -\frac{\omega_p^2}{4\pi} E \sin \varphi, \quad (\omega^2 - \omega_0^2 - \frac{3}{4}\kappa_3 p^2) p = -\frac{\omega_p^2}{4\pi} E \cos \varphi, \\ \operatorname{tg} \varphi &= \frac{\gamma\omega_0}{\omega^2 - \omega_0^2 - \frac{3}{4}\kappa_3 p^2}, \end{aligned} \quad (2.1.43)$$

$$\left[(\gamma\omega_0)^2 + (\omega^2 - \omega_0^2 - \frac{3}{4}\kappa_3 p^2)^2 \right] p^2 = \left(\frac{\omega_p^2}{4\pi} \right)^2 E^2.$$

Последнее соотношение переписется в обозначениях

$$\frac{3}{4}\kappa_3 p^2 \equiv Y, \quad \frac{3}{4}\kappa_3 \left(\frac{\omega_p^2}{4\pi} \right)^2 E^2 \equiv X \quad (2.1.44)$$

в виде

$$\left[(\gamma\omega_0)^2 + (\omega^2 - \omega_0^2 - Y)^2 \right] Y = X. \quad (2.1.45)$$

Это и есть (алгебраическое) уравнение для определения амплитуды колебаний поляризованности. Проанализируем его. При $X=0$ получим единственное решение $Y=0$. При малых X и Y

$$Y = X / \left[(\gamma\omega_0)^2 + (\omega^2 - \omega_0^2)^2 \right], \quad (2.1.46)$$

что согласуется с линейной моделью Друде – Лоренца (п. 2.1.1). При больших X и Y (этот предел условен ввиду предполагавшейся малости амплитуд)

$$Y = \sqrt[3]{X}. \quad (2.1.47)$$

В общем случае удобнее рассматривать обратную функцию, которая однозначна:

$$X = \left[(\gamma\omega_0)^2 + (\omega^2 - \omega_0^2 - Y)^2 \right] Y. \quad (2.1.48)$$

Исследование функции $X(Y)$ стандартно. Ее производная

$$\begin{aligned} \frac{dX}{dY} &= \left[(\gamma\omega_0)^2 + (\omega^2 - \omega_0^2 - Y)^2 \right] - 2Y(\omega^2 - \omega_0^2 - Y) = \\ &= 3Y^2 - 4(\omega^2 - \omega_0^2)Y + \left[(\gamma\omega_0)^2 + (\omega^2 - \omega_0^2)^2 \right]. \end{aligned} \quad (2.1.49)$$

Условия наличия экстремумов имеют вид

$$\text{sign}(\kappa_3) \text{sign}(\omega^2 - \omega_0^2) > 0, \quad |\omega^2 - \omega_0^2| > \sqrt{3}\gamma\omega_0. \quad (2.1.50)$$

Тогда для точек экстремумов (максимума и минимума)

$$Y = \frac{2(\omega^2 - \omega_0^2) \pm \sqrt{(\omega^2 - \omega_0^2)^2 - 3(\gamma\omega_0)^2}}{3}. \quad (2.1.51)$$

Обратная функция (рис. 2.3) неоднозначна. Более громоздкий анализ [4] показывает устойчивость решений, отвечающих нижней и верхней ветвям этой зависимости и неустойчивость для решений, относящихся к промежуточной ветви. Тем самым имеется диапазон *бистабильности*, то есть наличия двух устойчивых установившихся режимов колебаний при одних и тех же значениях амплитуды возбуждающего излучения (указан на рис. 2.3). Установление того или иного режима зависит от предыстории. При медленном возрастании амплитуды излучения от малых до больших значений и последующем ее убывании возникает *петля гистерезиса*, изображенная на рис. 2.3 линиями со стрелками.

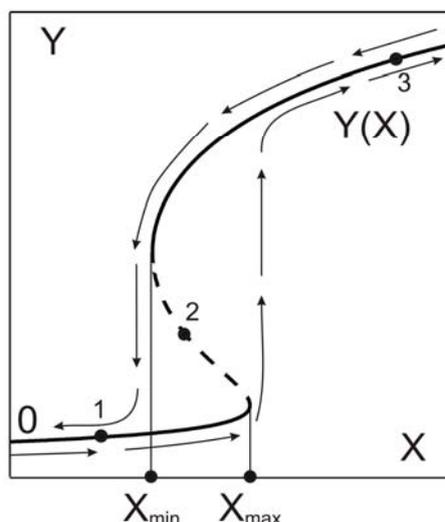


Рис. 2.3. Зависимость квадрата амплитуды колебаний поляризованности Y от квадрата амплитуды монохроматического излучения X . Бистабильность имеет место в диапазоне $X_{\min} - X_{\max}$. Промежуточная ветвь (2, штриховая линия) отвечает неустойчивым режимам, а нижняя (1) и верхняя (3) – устойчивым. Тонкие линии со стрелками показывают гистерезисное изменение амплитуды колебаний поляризованности при плавном изменении интенсивности излучения.

Подчеркнем, что в рамках стандартной нерезонансной теории возмущений получить бистабильность невозможно. Физически это означает, что в резонансных условиях среда обладает собственными степенями свободы и поляризованность не выражается в виде ряда по степеням амплитуды поля. Отметим также, что при больших амплитудах E

кубическое уравнение Дуффинга (31) описывает режим динамического хаоса [5].

Задание 2.5. Найти и проанализировать бистабильность осциллятора с квадратичной нелинейностью (уравнение (15) при монохроматическом возбуждении).

Решение. Перепишем (15) в форме, в которой все малые члены собраны в правой части уравнения (хотя их порядки величины различны):

$$\ddot{\tilde{P}} + \Omega^2 \tilde{P} = -\gamma \dot{\tilde{P}} + (\Omega^2 - \omega_0^2) \tilde{P} - \kappa_2 \tilde{P}^2 + \frac{\omega_p^2}{4\pi} E \cos(\omega t).$$

По смыслу задачи, внешняя сила с частотой ω возбуждает колебания на второй гармонике, частота которой $\Omega = 2\omega$ близка к собственной частоте осциллятора ω_0 . Последнее обстоятельство обеспечивает гистерезис и определяет принятые ниже соотношения порядков величин.

В нулевом порядке теории возмущений, как и ранее,

$$\ddot{\tilde{P}}_0 + \Omega^2 \tilde{P}_0 = 0, \quad \tilde{P}_0 = p_0 \cos(\Omega t + \varphi).$$

В первом порядке

$$\ddot{\tilde{P}}_1 + \Omega^2 \tilde{P}_1 = \frac{\omega_p^2}{4\pi} E \cos(\omega t), \quad \tilde{P}_1 = p_1 \cos(\omega t), \quad p_1 = \frac{\omega_p^2}{12\pi\omega^2} E.$$

Во втором порядке

$$\ddot{\tilde{P}}_2 + \Omega^2 \tilde{P}_2 = -\kappa_2 \tilde{P}_0^2 = -\frac{1}{2} \kappa_2 p_0^2 [1 + \cos(2\Omega t + 2\varphi)],$$

$$\tilde{P}_2 = p_{20} + p_{22} \cos(2\Omega t + 2\varphi), \quad p_{20} = -\frac{\kappa_2 p_0^2}{8\omega^2}, \quad p_{22} = \frac{\kappa_2 p_0^2}{24\omega^2}.$$

Наконец, в третьем порядке

$$\ddot{\tilde{P}}_3 + \Omega^2 \tilde{P}_3 = -2\kappa_2 \tilde{P}_0 \tilde{P}_2 - \kappa_2 \tilde{P}_1^2 - \gamma \dot{\tilde{P}}_0 + (\Omega^2 - \omega_0^2) \tilde{P}_0.$$

Периодическое решение последнего уравнения возможно при условиях типа (42), откуда вытекает уравнение вида (45) (*вывести самостоятельно*).

2.1.3. Другие осцилляторные модели

Модель осцилляторов эффективна для решения большого числа линейных и нелинейных оптических задач. Упомянем здесь только некоторые из них.

Модель связанных осцилляторов

При описании *комбинационного рассеяния* (следующая часть Пособия) излучения на молекулах рассматривается возбуждение оптическим излучением молекул, которые помимо частоты ω_0 электронного перехода характеризуются более низкой частотой молекулярных колебаний Ω_0 , $\Omega_0 / \omega_0 \sim 10^{-2}$. Поэтому медленные

колебания ядер около положения равновесия модулируют оптическую поляризуемость молекул. Феноменологическая модель связанных колебаний отклонений от равновесных положений координат электронов \tilde{x} и молекул Q имеет вид [6]

$$\ddot{\tilde{x}} + \gamma \dot{\tilde{x}} + \omega_0^2 \tilde{x} = \frac{e}{m} \tilde{E} + 2 \frac{\eta}{m} Q \tilde{x},$$

$$\ddot{Q} + \Gamma \dot{Q} + \Omega_0^2 Q = \frac{\eta}{M} x^2.$$
(2.1.52)

Здесь m и M – массы электрона и молекулы, соответственно, а величина η пропорциональна параметру Плачека (производной поляризуемости молекулы по Q). Согласно (52) ядра раскачиваются силой, пропорциональной квадрату колебаний электронов, и резонансное возбуждение молекулярных колебаний достигается, когда разностная частота колебаний электронов (разность частот оптических колебаний) приближается к собственной частоте Ω_0 .

Экситонные резонансы и пространственная дисперсия

В предыдущих разделах мы игнорировали эффекты пространственной дисперсии ввиду их слабости в обычных условиях из-за малости отношения межатомных расстояний к длине волны оптического излучения. Однако во многих диэлектриках и полупроводниках могут возбуждаться экситоны – квазичастицы, отвечающие электронному возбуждению и мигрирующие по твердому телу без переноса электрического заряда и массы [7]. Один из типов экситонов – экситоны ВаньеМотта – можно интерпретировать как водородоподобное связанное состояние электрона проводимости и дырки. Размеры таких экситонов могут значительно превышать межатомные расстояния в полупроводнике, в связи с чем роль эффектов пространственной дисперсии возрастает, особенно при близости частоты излучения к резонансной частоте экситона.

Одна из простейших теорий резонансного возбуждения экситонов оптическим излучением, справедливая для изолированного экситонного электродипольного резонанса в кубическом кристалле, отвечает следующей осцилляторной модели [8]:

$$\ddot{\tilde{P}} + \gamma \dot{\tilde{P}} + \omega_0^2 \tilde{P} - \frac{\hbar \omega_0}{M_e} \Delta \tilde{P} = \frac{\omega_{pe}^2}{4\pi} \tilde{E}.$$
(2.1.53)

Здесь поляризация излучения фиксирована и обозначения близки к использованным в п. 2.1 для модели Друде – Лоренца, ср. с (2). Так, P – экситонная составляющая поляризованности, ω_0 – собственная частота экситонного перехода, γ – постоянная затухания, \tilde{E} – электрическая напряженность поля излучения. Специфически экситонными параметрами служат M_e – эффективная масса экситона (изотропная модель) и

$\omega_{pe}^2 = \frac{2d^2}{\hbar\omega_0 V_0}$ – квадрат плазменной экситонной частоты (d – матричный

элемент дипольного экситонного перехода, V_0 – объем элементарной ячейки кристалла). Пространственная дисперсия учтена в (53) членом с оператором Лапласа Δ .

Как и (2), уравнение (53) линейно и описывает линейную восприимчивость среды. Чтобы найти ее, положим

$$\tilde{E} = \frac{1}{2} E \exp(ikz - i\omega t) + \text{к.с.}, \quad \tilde{P} = \frac{1}{2} P \exp(ikz - i\omega t) + \text{к.с.}, \quad (2.1.54)$$

где ω и k – частота и волновое число излучения. Подстановкой (54) в (53) получаем

$$P = \chi^{(1)}(\omega, k) E, \quad (2.1.55)$$

где (ср. с (9))

$$\chi^{(1)}(\omega, k) = \frac{\omega_{pe}^2}{4\pi} \frac{1}{\omega_0^2 - i\gamma\omega - \omega^2 + \frac{\hbar\omega_0}{M_e} k^2}. \quad (2.1.56)$$

Согласно (56), линейная восприимчивость $\chi^{(1)}(\omega, k)$ зависит не только от частоты излучения, но и от квадрата волнового числа (пространственная дисперсия). Модель отвечает изотропной негиротропной среде. С учетом следующего из волнового уравнения

соотношения $k^2 = \frac{\omega^2}{c^2} [1 + 4\pi\chi^{(1)}]$ дисперсионное соотношение сводится к

квадратному уравнению для определения зависимости линейной восприимчивости от частоты. Особенности линейных дисперсионных соотношений вблизи экситонных резонансов рассмотрены в [2].

Обобщением (52) на нелинейный случай служит уравнение (ср. с (13))

$$\ddot{\tilde{P}} + \gamma\dot{\tilde{P}} + \omega_0^2 \tilde{P} - \frac{\hbar\omega_0}{M_e} \Delta\tilde{P} + \kappa_2 \tilde{P}^2 + \kappa_3 \tilde{P}^3 + \dots = \frac{\omega_{pe}^2}{4\pi} \tilde{E}. \quad (2.1.57)$$

Это уравнение описывает, в частности, изложенные выше эффекты генерации гармоник, суммарных и разностных частот, а также гистерезисные явления.

Задание 2.6. Исходя из (54) и (57) при $\kappa_3 = 0$, найти квадратичную восприимчивость, отвечающую генерации второй гармоники.

Указание. Как и для нелинейной модели Друде – Лоренца, использовать нерезонансный вариант теории возмущений.

Оптическая нелинейность наноструктур и метаматериалов

Недавний впечатляющий прогресс в технологии создания искусственных композитных оптических сред – наноструктур и метаматериалов – делает реальной разработку сред с заранее задаваемыми и управляемыми характеристиками, в том числе с отрицательными диэлектрической и магнитной проницаемостями (см. также п. 1.7). В твердотельных наноструктурах (гетероструктурах) формируются пространственные неоднородности с масштабами от единиц до сотен нанометров, внутри которых возможна локализация внешнего оптического излучения и различных элементарных возбуждений твердого тела. Например, согласно теории Ми [9], для шарика малых размеров с диэлектрической проницаемостью ε_s , находящегося в материале с диэлектрической проницаемостью ε_m , соотношение между действующим полем E_s и полем в объемном материале E_m следующее

$$\frac{E_s}{E_m} \sim \frac{\varepsilon_m - \varepsilon_s}{\varepsilon_m + 2\varepsilon_s}. \quad (2.1.58)$$

Резонансное усиление поля, когда знаменатель дроби в правой части (58) приближается к нулю, происходит вблизи частоты излучения $\omega = \omega_p / \sqrt{3}$, где ω_p – плазменная частота (см. (2.1.3)), и интерпретируется как возбуждение коллективных колебаний электронов в среде (мода Фрелиха). Более общее условие резонансного усиления в соответствии с теорией Ми формулируется в виде $\varepsilon_m / \varepsilon_s = -(j+1)/j$, $j = 1, 2, 3, \dots$. Естественно, что при таком усилении поля возрастает роль нелинейности среды. Некоторые нелинейно-оптические свойства металлических частиц рассмотрены в [10].

Более изоцированные метаматериалы могут включать металлические проволоочки и кольцевые резонаторы с размерами, меньшими длины волны излучения. На рис. 2.4 представлена схема такой двумерной композитной структуры с квадратной решеткой периодических ячеек из проводящих проволоочек (обеспечивающих, главным образом, отрицательную вещественную часть эффективного показателя преломления) и разомкнутых кольцевых резонаторов (приводящих к отрицательной магнитной проницаемости).

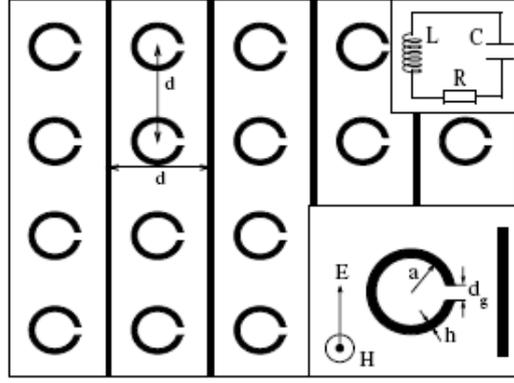


Рис. 2.4. Схема композитного метаматериала, состоящего из проводящих проволок (вертикальные линии) и разомкнутых кольцевых резонаторов. Нижняя вставка указывает геометрические параметры резонаторов и поляризационную структуру излучения. На верхней вставке представлена расчетная модель эквивалентного осциллятора [11].

Нелинейность композитной структуры определяется двумя факторами. Во-первых, имеется вклад от зависимости от интенсивности объемной диэлектрической проницаемости диэлектрика-заполнителя $\varepsilon_D = \varepsilon_D(|\mathbf{E}|^2)$. Во-вторых, решетка резонаторов также приводит к нелинейному вкладу, так как емкость резонаторов и, соответственно, их собственная частота зависят от локального электрического поля в узком зазоре. В свою очередь, интенсивность поля в зазоре зависит от электродвижущей силы в цепи резонатора, которая индуцируется магнитным полем. Поэтому эффективная магнитная проницаемость μ_{eff} должна зависеть от средней напряженности магнитного поля \mathbf{H} .

Выполненный в [11] анализ показал, что при определенных условиях эффективные нелинейные диэлектрическая и магнитная проницаемости могут быть записаны в виде

$$\varepsilon_{eff} = \varepsilon_D(|\mathbf{E}|^2) - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega - i\gamma_\varepsilon)}, \quad \mu_{eff}(\mathbf{H}) = 1 + \frac{F\omega^2}{\omega_{0NL}^2(\mathbf{H}) - \omega^2 + i\Gamma\omega}. \quad (2.1.59)$$

Здесь $\omega_p \approx (c/d)[2\pi/\ln(d/r)]^{1/2}$ – эффективная плазменная частота, $\gamma_\varepsilon = c^2/2\sigma S \ln(d/r)$, d – период решетки (см. рис. 2.4), r – радиус проволок, $F = \pi a^2/d^2 \ll 1$, $\Gamma = c^2/2\pi\sigma a \min(h, \delta)$, σ – проводимость металла проволок, S – эффективная площадь их сечения ($S \approx \pi r^2$ при $\delta > r$ и $S \approx \pi\delta(2r - \delta)$ при $\delta < r$, где $\delta = c/\sqrt{2\pi\sigma\omega}$ – толщина скин-слоя, h – толщина слоя в кольцевом резонаторе (см. рис. 2.4). Наконец,

$$\omega_{0NL}^2(\mathbf{H}) = \left(\frac{c}{a}\right)^2 \frac{d_g}{\pi h \varepsilon_D(|\mathbf{E}_g(\mathbf{H})|^2)} \quad (2.1.60)$$

– собственная частота осцилляций в присутствии внешнего поля конечной амплитуды и E_g – напряженность электрического поля в области зазоров резонаторов. Согласно (59) и (60), резонансная частота искусственной магнитной структуры зависит от амплитуды внешнего магнитного поля, и это приводит к зависимости от интенсивности магнитной проницаемости μ_{eff} . В характерных условиях высокочастотных резонаторов собственная частота осцилляций ω_{0NL} является многозначной функцией напряженности магнитного поля, что вызывает различные гистерезисные явления.

Заметим, что реальные размеры микрорезонаторов заметно больше размеров ячеек обычных кристаллов и даже размеров экситонов в полупроводниках. Поэтому можно ожидать, что для такого метаматериала могут быть сильно выражены анизотропия и пространственная дисперсия – факторы, которые не учитывались в приближенной модели.

2.1.4. Ориентационная оптическая нелинейность

Если среда состоит из анизотропных молекул, обладающих в отсутствие излучения собственным дипольным моментом, то их ориентация и ее степень зависят от возбуждающего молекулы поляризованного оптического излучения. Например, в газе или жидкости с малой концентрацией молекул, обладающих осевой симметрией, в отсутствие излучения ориентация дипольных моментов произвольна. В электрическом поле ось молекул стремится к ориентации вдоль электрической напряженности поля. Идеальной ориентации препятствуют температурные флуктуации, и установившаяся функция распределения по углу ориентации отвечает балансу этих двух факторов. Ввиду анизотропии молекул поляризованность, определяемая как произведение концентрации на среднее значение поляризуемостей молекул, будет зависеть от напряженности электрического поля, что и демонстрирует ориентационную оптическую нелинейность. Этот механизм количественно рассматривается в следующей части Пособия.

Другой пример ориентационной нелинейности представляют жидкие кристаллы, которые также состоят из анизотропных молекул удлиненной формы. Но теперь концентрация молекул не может считаться низкой, и даже в отсутствие излучения может иметься высокая степень ориентации молекул в отдельных доменах жидкого кристалла (поликристаллическая структура). Внешние воздействия, в том числе поляризованное оптическое излучение, могут ориентировать домены, превращая жидкий кристалл в «монокристалл». Нелинейно-оптические эффекты в жидких кристаллах проявляются уже при весьма малых мощностях лазерного излучения (несколько мВт). Они также будут рассмотрены в следующей части Пособия.

2.2. Квантовомеханическое вычисление нелинейной поляризуемости

Полный расчет *ab initio* («с самого начала») нелинейного отклика квантовых объектов на интенсивное лазерное излучение весьма сложен. Даже для сравнительно простых молекул он требует решения многочастичной задачи с учетом взаимодействия излучения не только с электронами, но и с (движущимися) ядрами. Без использования теории возмущений по напряженности поля такие задачи решаются только для модельных схем, см., например, [12].

В рамках теории возмущений по напряженности излучения задача заметно упрощается. В настоящее время на этом пути возможен расчет нелинейных восприимчивостей кластеров, кристаллов и стекол. Разъяснение применяемых методов расчета оптической нелинейности требует отдельного изложения. Здесь мы ограничимся в качестве примеров несколькими ссылками [13-17] и перейдем к более простому одноэлектронному приближению квантовомеханического уравнения Шредингера. Несмотря на определенные ограничения, в том числе пренебрежение или упрощенную трактовку релаксационных процессов, такой подход весьма важен, главным образом, для нелинейной оптики и нелинейной спектроскопии атомарных и молекулярных газов. Более полное изложение можно найти в [18, 19].

2.2.1. Уравнение Шредингера

Исходным служит уравнение Шредингера для волновой функции ψ , для определенности атомов, взаимодействующих с электромагнитным полем [20]:

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = \hat{H} \psi. \quad (2.2.1)$$

Здесь

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V} \quad (2.2.2)$$

– полный оператор Гамильтона атома, взаимодействующего с излучением, \hat{H}_0 – оператор Гамильтона невозмущенного атома (в отсутствие электромагнитного поля), а \hat{V} – оператор взаимодействия атома с полем. Поскольку в этом пособии используется и название «нелинейное уравнение Шредингера», отметим, что уравнение (1) линейно по волновой функции. Это не означает линейности описываемой им системы по напряженности электромагнитного поля, что и объясняет возможность его использования для вычисления нелинейной поляризуемости. По правилам квантовой механики среднее значение физической величины f , соответствующей оператору \hat{f} , дается его матричным элементом

$$\langle f(t) \rangle = \int \psi^*(\mathbf{r}, t) \hat{f} \psi(\mathbf{r}, t) d\mathbf{r} = \langle \psi | \hat{f} | \psi \rangle. \quad (2.2.3)$$

Собственные функции невозмущенной системы ($\hat{V} = 0$) считаются известными

$$\psi_n^{(0)}(\mathbf{r}, t) = \Phi_n(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_n t). \quad (2.2.4)$$

Собственные частоты ω_n связаны с уровнями энергии E_n соотношением $\omega_n = E_n / \hbar$. Далее мы избегаем обозначения для уровней энергии, сохраняя букву E для напряженности электрического поля. Собственные частоты вещественны и отвечают дискретному и сплошному спектру. Базисные функции Φ_n составляют полную ортонормированную систему, последнее условие в случае дискретного спектра записывается в виде

$$\int \Phi_m^* \Phi_n d\mathbf{r} = \delta_{nm}. \quad (2.2.5)$$

Произвольное решение невозмущенного ($\hat{V} = 0$) уравнения Шредингера (для любых начальных условий) имеет вид

$$\psi^{(0)}(\mathbf{r}, t) = \sum_n a_n \psi_n^{(0)}(\mathbf{r}, t), \quad a_n = \text{const}. \quad (2.2.6)$$

Ищем решение возмущенного уравнения (1) в виде (используется полнота базисных функций)

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \sum_n a_n(t) \psi_n^{(0)}(\mathbf{r}, t). \quad (2.2.7)$$

После подстановки (7) в (1) с учетом (2) находим

$$\sum_n \psi_n^{(0)}(\mathbf{r}, t) \frac{da_n}{dt} = \frac{1}{i\hbar} \sum_n a_n \hat{V} \psi_n^{(0)}(\mathbf{r}, t). \quad (2.2.8)$$

Умножаем обе части (8) на $\psi_n^{(0)*}(\mathbf{r}, t)$, интегрируем по \mathbf{r} и используем условия ортонормированности (5). Тогда получаем систему обыкновенных дифференциальных уравнений

$$\frac{da_n}{dt} = \frac{1}{i\hbar} \sum_j V_{nj}(t) a_j, \quad (2.2.9)$$

где ведены матричные элементы оператора взаимодействия

$$V_{nj}(t) = \langle \psi_n^{(0)} | \hat{V} | \psi_j^{(0)} \rangle = \int \psi_n^{(0)*} \hat{V} \psi_j^{(0)} d\mathbf{r}, \quad V_{jn} = V_{nj}^*. \quad (2.2.10)$$

Естественным начальным условием служит нахождение атома в состоянии с индексом i (обычно основное состояние):

$$a_n(0) = \delta_{n,i}. \quad (2.2.11)$$

Задание 2.7. Используя (9) и (10), убедиться в справедливости тождества

$$\frac{d}{dt} \sum_n |a_n|^2 = 0. \quad (2.2.12)$$

Каков физический смысл результата?

Из полученных соотношений можно последовательно определить амплитуды в различных порядках теории возмущений:

$$a_n = a_n^{(0)} + a_n^{(1)} + a_n^{(2)} + \dots, \\ a_n^{(m)}(0) = \delta_{n,i} \delta_{m,0}, \quad (2.2.13)$$

причем оказывается, что

$$a_n^{(m)}(t) = (i\hbar)^{-1} \sum_j \int_{-\infty}^t V_{nj}(t') a_j^{(m-1)}(t') dt', \quad m \geq 1. \quad (2.2.14)$$

Дальнейшие вычисления требуют конкретизации вида потенциала взаимодействия. Мы рассматриваем случай электродипольного перехода в одноэлектронном приближении, когда

$$\hat{V} = -\hat{\mathbf{d}}\tilde{\mathbf{E}}, \\ \hat{\mathbf{d}} = -e\mathbf{r}(t), \quad e > 0. \quad (2.2.15)$$

Здесь $\hat{\mathbf{d}}$ – оператор электрического дипольного момента (такой переход считается разрешенным). Исходный вид оператора содержит импульс электрона $\hat{\mathbf{p}}$, в длинноволновом приближении из него следует вид (15) [21]. Различия возникают в приближенном рассмотрении, когда в разложении (7) сохраняется конечное число уровней энергии. При этом форма (15) имеет предпочтение по точности [22]. Результатом будет вычисление линейной и нелинейных восприимчивостей атомарных газов. Представленная теория возмущений неэффективна в случае резонансов, когда частоты поля совпадают с частотами переходов или находятся с ними в рациональном отношении. Отметим также, что ввиду пренебрежения релаксационными процессами и взаимодействием рассматриваемой системы с термостатом таким образом не описываются линейное и нелинейное поглощение.

В ряде случаев удастся решить систему (9) без использования стандартной теории возмущений. Важный случай – резонансное взаимодействие двухуровневой системы с монохроматическим излучением, когда

$$\tilde{\mathbf{E}}(t) = \frac{1}{2} \{ \mathbf{E} \exp(-i\omega t) + \mathbf{E}^* \exp(i\omega t) \}. \quad (2.2.16)$$

Основное условие применимости – частота поля ω резонансна только одному из атомных переходов и далека от частот остальных переходов (существенная неэквидистантность уровней энергии). Тогда можно считать остальные уровни слабо заселенными и в точной системе (9) сохранить только амплитуды двух уровней с резонансным переходом.

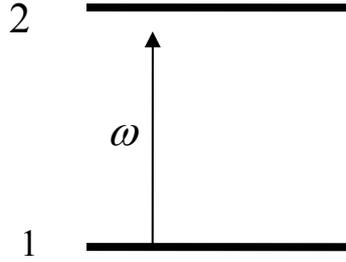


Рис. 2.5. Резонансное взаимодействие излучения с двухуровневой схемой.

Атомный переход между уровнями 1 и 2 изображен на рис. 2.5. Считаем, что $\omega_2 > \omega_1$ и $\omega \approx \omega_2 - \omega_1$. Постоянный дипольный момент отсутствует, поэтому $V_{11} = V_{22} = 0$, а $V_{21} = V_{12}^*$. Используем «приближение вращающейся волны» (медленно меняющихся амплитуд), то есть пренебрегаем быстро осциллирующими экспонентами вида $\exp[\pm i(\omega_2 - \omega_1 + \omega)t]$, сохраняя $\exp[\pm i(\omega_2 - \omega_1 - \omega)t]$. Тогда (9) сводится к следующей линейной системе:

$$\frac{da_1}{dt} = iR^* a_2 \exp(-i\delta t), \quad (2.2.17)$$

$$\frac{da_2}{dt} = iRa_1 \exp(i\delta t),$$

где $\delta = \omega_2 - \omega_1 - \omega$, $R = d_{21}E/(2\hbar)$. Величина R имеет размерность частоты и $|R|$ называют частотой Раби. Величины $|a_{1,2}|^2$ имеют смысл населенностей соответствующих уровней, $|a_1|^2 + |a_2|^2 = 1$. Поляризованность выражается через величины вида $a_1 a_2^*$ (см. ниже п. 2.3).

Заменой переменных

$$b = a_2 \exp(-i\delta t) \quad (2.2.18)$$

можно устранить в (17) временную зависимость коэффициентов:

$$\frac{da_1}{dt} = iR^* b, \quad \frac{db}{dt} = iRa_1 - i\delta b. \quad (2.2.19)$$

Исключая отсюда a_1 , находим

$$\frac{d^2 b}{dt^2} + i\delta \frac{db}{dt} + |R|^2 b = 0. \quad (2.2.20)$$

Если искать решение (20) в виде $b \sim \exp(iqt)$, то характеристический показатель

$$q = -\frac{\delta}{2} \pm \sqrt{\left(\frac{\delta}{2}\right)^2 + |R|^2}. \quad (2.2.21)$$

Нетрудно выписать общее решение (20) и (19). Более простой вид оно имеет при точном резонансе $\delta = 0$ при начальном условии, отвечающем заселению при $t = 0$ только нижнего уровня a_1 :

$$a_1 = -i \frac{R^*}{|R|} \cos(|R|t), \quad a_2 = \sin(|R|t). \quad (2.2.22)$$

Населенности уровней

$$|a_1|^2 = \cos^2(|R|t), \quad |a_2|^2 = \sin^2(|R|t). \quad (2.2.23)$$

Видно, что система периодически, с частотой Раби $|R|$, совершает переходы между низшим и верхним состояниями. Обычная теория возмущений (с разложением решения по степеням поля) в этом случае, очевидно, неэффективна.

Как следует из (17), после окончания импульса излучения (когда $R = 0$) амплитуды $a_{1,2}$ остаются постоянными. Тогда дипольный момент атома будет осциллировать с частотой $\omega_{21} = \omega_2 - \omega_1$ периодически (неограниченно долго). В соответствии с уравнениями Максвелла это будет сопровождаться излучением с постоянной средней за период мощностью и, соответственно, бесконечной энергией. Нефизический характер этого результата свидетельствует об ограниченности модели и принципиальной роли релаксационных процессов. Другие ограничения подхода связаны с пренебрежением флуктуациями. Кроме того, здесь мы вообще не обсуждали влияние оптического излучения на распределение скоростей атомов и молекул в газе. Часть этих ограничений снимается в более полном рассмотрении с помощью матрицы плотности (п. 2.3).

2.2.2. Оптическая нелинейность конденсата Бозе – Эйнштейна

Обобщение уравнения Шредингера позволяет описывать и такое макроскопическое квантовое состояние как конденсат Бозе – Эйнштейна, характеризующийся единой волновой функцией [23]; такое описание уже выходит за рамки одноэлектронного приближения. Недавно реализованная бозе-эйнштейновская конденсация (БЭК) атомарных газов требует весьма низких температур (критическая температура обратно пропорциональна массе атомов). В то же время эффективная масса экситонов в полупроводниках может быть близка к массе электрона, что существенно повышает критическую температуру их конденсации. БЭК экситонных поляритонов экспериментально наблюдалась при температуре 7.3 К [24], причем оценки показывают возможность достижения БЭК экситонов даже при комнатной температуре, например, в полупроводниках с квантовыми ямами. БЭК как макроскопическое квантовое состояние вещества обладает рядом уникальных свойств, в том числе аномально высокой оптической нелинейностью [25]. Для БЭК коллективная волновая функция Φ , квадрат модуля которой определяет

концентрацию либо атомов (атомарный конденсат), либо экситонов (экситонный конденсат), подчиняется уравнению Гросса – Питаевского (атомарный конденсат) или Келдыша (экситонный конденсат). В последнем случае уравнение Келдыша для полупроводника, в котором внешнее лазерное излучение с частотой ω и амплитудой E поддерживает когерентное состояние экситонов с волновой функцией (амплитудой экситонной волны) Φ имеет вид [26, 27]:

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} = -(\gamma + i\delta\omega)\Phi + i\frac{\hbar}{2m}\Delta\Phi - i\frac{g}{\hbar}|\Phi|^2\Phi + i\frac{d_{ex}}{\hbar\sqrt{v_0}}E. \quad (2.2.24)$$

Здесь γ – константа затухания экситонов, $\delta\omega$ – отстройка частоты лазерного излучения от частоты экситонного перехода, m – эффективная (трансляционная) масса экситона, d_{ex} – дипольный момент перехода из основного состояния кристалла в экситонное, v_0 – объем элементарной ячейки кристалла, g – коэффициент упругого экситон-экситонного взаимодействия, κ – константа насыщения дипольного момента экситонного перехода. Для лазерного излучения используется комплексная форма записи (16). Уравнение Келдыша (24) отвечает приближениям вращающейся волны и среднего поля, условия применимости которого указаны в [26]. Это уравнение будет использовано в следующей части Пособия.

2.3. Матрица плотности

2.3.1. Уравнение Неймана

Как правило, взаимодействующая с оптическим излучением система является открытой (незамкнутой), что ограничивает ее рассмотрение с помощью уравнения Шредингера. В действительности она является подсистемой, взаимодействующей с резервуаром (термостатом). Поэтому подсистема не обладает определенной волновой функцией, то есть она не находится в «чистом состоянии». К характеристикам собственно подсистемы необходимо добавить статистически усредненные характеристики термостата. Эффективно «смешанные состояния» подсистемы описываются с помощью матрицы плотности, заменяющей волновую функцию.

Матрица плотности имеет смысл и для чистых состояний (замкнутая система), обладающих волновой функцией ψ . Введем матрицу плотности сначала именно в этом случае, исходя из уравнения Шредингера (2.2.1) и аналогичного (2.2.6) разложения волновой функции по произвольному полному набору ортонормированных функций $\varphi_n(\mathbf{r})$:

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \sum_n a_n(t)\varphi_n(\mathbf{r}), \quad (2.3.1)$$

$$\int \varphi_m^* \varphi_n d\mathbf{r} = \delta_{nm}. \quad (2.3.2)$$

Динамика коэффициентов a_n определяется аналогичной (2.2.9) системой уравнений

$$\frac{da_n}{dt} = \frac{1}{i\hbar} \sum_j H_{nj} a_j, \quad (2.3.3)$$

где (ср. с (2.2.10))

$$H_{nj} = \langle \psi_n^{(0)} | \hat{H} | \psi_j^{(0)} \rangle = \int \psi_n^{(0)*} \hat{H} \psi_j^{(0)} d\mathbf{r}, \quad H_{jn} = H_{nj}^*. \quad (2.3.4)$$

Матрица плотности $\hat{\rho}$ определяется как оператор с матричными элементами

$$\rho_{mn} = a_n a_m^*, \quad \rho_{nm} = \rho_{mn}^*, \quad (2.3.5)$$

то есть

$$\int d\mathbf{r} \psi_m^{(0)*} \hat{\rho} \psi_n^{(0)} = a_n a_m^*. \quad (2.3.6)$$

Определение среднего значения физических величин (2.2.3) записывается с помощью матрицы плотности в виде

$$\langle f \rangle = \sum_{mn} \rho_{mn} f_{nm} = \text{Sp}(\hat{\rho} \hat{f}), \quad (2.3.7)$$

где введено обозначение для суммы диагональных элементов оператора-матрицы

$$\text{Sp} \hat{L} = \sum_n L_{nn}, \quad (2.3.8)$$

называемое следом, или шпуром матрицы (немецкий вариант; в английской литературе используется символ Tr от “trace”). Для дискретного спектра (волновая функция ψ нормирована)

$$\text{Sp} \hat{\rho} = 1, \quad 0 \leq \rho_{nn} \leq 1. \quad (2.3.9)$$

Для рассматриваемых чистых состояний

$$\hat{\rho} \cdot \hat{\rho} = \hat{\rho}. \quad (2.3.10)$$

Это соотношение можно проверить, вычислив матричные элементы его правой и левой части и воспользовавшись определением (5) и условием нормировки волновой функции:

$$(\hat{\rho} \cdot \hat{\rho})_{mn} = \sum_k \rho_{mk} \rho_{kn} = \sum_k a_m a_k^* a_k a_n^* = a_m a_n^* \sum_k a_k^* a_k = \rho_{mn} \sum_k |a_k|^2 = \rho_{mn}. \quad (2.3.11)$$

Уравнение эволюции матрицы плотности в данном случае находится непосредственно из определения (5) и уравнений (3) с учетом (4):

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_{nm}}{\partial t} &= a_m^* \frac{da_n}{dt} + a_n \frac{da_m^*}{dt} = \frac{1}{i\hbar} \left\{ a_m^* \sum_j H_{nj} a_j - a_n \sum_j H_{nj}^* a_j \right\} = \\ &= \frac{1}{i\hbar} \sum_j (H_{nj} \rho_{jm} - \rho_{nj} H_{jn}). \end{aligned} \quad (2.3.12)$$

В матричной форме это уравнение Неймана имеет вид

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho} = [\hat{H}, \hat{\rho}], \quad (2.3.13)$$

где введено обозначение коммутатора двух операторов

$$[\hat{H}, \hat{\rho}] = \hat{H}\hat{\rho} - \hat{\rho}\hat{H}. \quad (2.3.14)$$

Уравнение (13) эквивалентно уравнению Шредингера (2.2.1).

Далее кратко рассмотрим значительно более сложный случай открытой подсистемы, находящейся в смешанном состоянии [1, 28, 29].

Полная система с гамильтонианом

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}_{0f} + \hat{V}_{0r} \quad (2.3.15)$$

состоит из интересующей нас подсистемы (атома, молекулы, их ансамбля или кристалла и даже поля внутри резонатора) с гамильтонианом \hat{H}_0 , которая может взаимодействовать с внешними полями (потенциал взаимодействия \hat{V}_{0f}), и ее окружения – резервуара, описывающего в том числе термодинамические и квантовые флуктуации. Заметим, что для учета последних недостаточно использования полуклассического приближения и электромагнитное поле также должно трактоваться квантовым образом. Предполагается, что резервуар обладает практически сплошным спектром и, соответственно, весьма малым временем корреляции τ_c (определяемым, например, временем столкновения атомов в резервуаре), а также существенно превосходит по размерам подсистему, ввиду чего воздействие подсистемы на резервуар пренебрежимо слабое. Теперь волновая функция зависит от переменных не только подсистемы, но и резервуара. Взаимодействие подсистемы с резервуаром (потенциал взаимодействия \hat{V}_{0r}) также считается слабым и трактуется в рамках теории возмущений. Ввиду этого взаимодействия подсистема находится в смешанном состоянии и не может характеризоваться определенной волновой функцией вида (1) (в том числе когерентной смесью волновых функций различных энергетических состояний подсистемы). Вместо этого имеется лишь распределение вероятностей ее нахождения в том или ином энергетическом состоянии. Тогда применение теории возмущений по взаимодействию подсистемы с резервуаром с потенциалом \hat{V}_{0r} приводит при определенных предположениях к замкнутому уравнению Неймана, описывающему эволюцию матрицы плотности подсистемы. Среди этих предположений укажем огрубление временного масштаба (рассмотрение временных деталей с масштабом, превышающим время корреляции в резервуаре τ_c , которое совпадает с периодом оптических колебаний $\tau_c \sim \omega_0^{-1}$, если основным механизмом релаксации в резервуаре служит взаимодействие с вакуумом и спонтанное излучение), но заметно меньшим времени релаксации рассматриваемой подсистемы. Используется также предположение об отсутствии вырождения энергетических уровней подсистемы (нет переходов между уровнями

$m \neq n$ с разностями частот $|\omega_{mn}| \ll \tau_c^{-1}$). При рассмотрении релаксации недиагональных элементов матрицы плотности отдельно следует анализировать случаи отсутствия близких частот переходов между различными парами уровней и противоположный случай эквидистантных энергетических уровней подсистемы.

Далее мы используем энергетическое представление, в котором диагональные элементы матрицы плотности имеют смысл населенностей соответствующих уровней. Будем считать сначала внешнее электромагнитное поле классическим. Тогда взаимодействие подсистемы с резервуаром приводит к следующим важным эффектам. Первый эффект – релаксация и переходы между различными состояниями подсистемы, включая вызванные спонтанным излучением. Этот эффект описывается заменой (13) на следующее эволюционное уравнение:

$$\frac{\partial \rho_{mn}}{\partial t} + i\omega'_{mn}\rho_{mn} + \frac{i}{\hbar}[\hat{V}, \hat{\rho}]_{mn} = \begin{cases} \sum_k (w_{km}\rho_{kk} - w_{mk}\rho_{mm}) & \text{при } m = n, \\ -\gamma_{mn}\rho_{mn} & \text{при } m \neq n. \end{cases} \quad (2.3.16)$$

Здесь

$$\gamma_{mn} = \gamma_{nm} = \frac{1}{2} \sum_k (w_{mk} + w_{nk}) - 2\Gamma_{mnmn},$$

$$\omega'_{mn} = \omega_{mn} + \frac{1}{\hbar}(\Gamma_{mm} - \Gamma_{nn}), \quad w_{km} = 2\Gamma_{mkkm}, \quad (2.3.17)$$

а матричные элементы релаксационного оператора $\hat{\Gamma}$ выражаются через квадратичные формы от матричных элементов оператора взаимодействия подсистемы с резервуаром [28]. Параметры γ_{mn} описывают скорость релаксации недиагональных элементов матрицы плотности, через которые выражается дипольный момент и поляризуемость атомов и молекул. Величины w_{mn} являются вероятностями переходов из состояния m в состояние n за единицу времени вследствие взаимодействия подсистемы с резервуаром; они определяют времена жизни соответствующих уровней и скорости заселения уровня с других уровней. Релаксационные процессы не меняют суммарной заселенности уровней: из (16) также следует соотношение $d(\text{Sp}\hat{\rho})/dt = 0$. В разреженных газах скорость релаксации диагональных элементов (обратное время жизни уровней) для разрешенных электродипольных оптических переходов $\sim 10^9 \text{ с}^{-1}$. В газах с не слишком малой плотностью, сложных молекулах и конденсированных средах скорость релаксации недиагональных элементов матрицы плотности может значительно превосходить обратные времена жизни. Поэтому для данного перехода часто вводятся две феноменологические постоянные релаксации – продольная (для диагональных элементов) и поперечная (для недиагональных элементов).

В отсутствие внешних полей подсистема, взаимодействующая с резервуаром, должна приходиться к равновесному состоянию, зависящему от температуры резервуара T . Для идеального газа можно принять статистику Больцмана и считать

$$\rho_{mn}^{eq} = \rho_{mn}^{eq} \delta_{mn} = \frac{1}{Z} \delta_{mn} \exp\left(-\frac{\hbar \omega_n}{k_B T}\right), \quad (2.3.18)$$

где k_B – постоянная Больцмана и Z – статистическая сумма (нормировочный множитель):

$$Z = \sum_n \exp\left(-\frac{\hbar \omega_n}{k_B T}\right). \quad (2.3.19)$$

Тогда из (16), в соответствии с принципом детального равновесия, следует $w_{mn} \rho_{nn}^{eq} = w_{nm} \rho_{mm}^{eq}$, так что

$$w_{mn} = w_{nm} \exp\left(\frac{\hbar \omega_{nm}}{k_B T}\right). \quad (2.3.20)$$

Так, если $m > n$, то при достаточно низких температурах вероятность перехода под действием резервуара с нижнего уровня на верхний много меньше, чем для перехода с верхнего уровня на нижний ($w_{mn} \ll w_{nm}$).

Другое следствие влияния резервуара на подсистему, отраженное в (16) и (17), заключается в сдвиге энергетических уровней подсистемы (замена $\omega_{mn} \rightarrow \omega'_{mn}$). Такой сдвиг, характерный для второго порядка теории возмущений, в случае резервуара, отвечающего вакууму или спонтанному излучению, называют *сдвигом Лэмба*; численно он весьма мал. Поэтому далее мы не будем различать величин ω_{mn} и ω'_{mn} .

Наконец, принципиальное следствие взаимодействия рассматриваемой подсистемы с резервуаром (термостатом) – это возникновение *шума* из-за возвращения некоторой доли энергии от резервуара к подсистеме. Шум определяется двумя факторами: 1) температурными флуктуациями, зависящими от температуры термостата T , и 2) чисто квантовыми флуктуациями, сохраняющимися и при нулевой температуре $T=0$. Последние наиболее ярко проявляются в задачах следующего типа. Рассмотрим квантовое электромагнитное поле в одномодовом резонаторе, заполненном нелинейной средой (результаты применимы и к задаче о квантовомеханическом гармоническом осцилляторе, взаимодействующем с резервуаром). Теперь в (15) гамильтониан \hat{H}_0 будет описывать именно квантовое поле, \hat{V}_{0f} – потенциал его взаимодействия с внешним классическим полем (например, внешней накачкой) и \hat{V}_{0r} – потенциал взаимодействия квантового поля с резервуаром. С учетом этого обстоятельства можно получить уравнение Неймана для матрицы плотности $\hat{\rho}$ подсистемы, взаимодействующей с

резервуаром – системой большого числа гармонических осцилляторов [29]:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = & -\frac{i}{\hbar}[\hat{H}, \hat{\rho}] + \frac{\gamma}{2}(1 + \bar{N})(2C\hat{\rho}C^\dagger - C^\dagger C\hat{\rho} - \bar{\rho}C^\dagger C) + \\ & + \frac{\gamma}{2}\bar{N}(2C^\dagger \hat{\rho}C - CC^\dagger \hat{\rho} - \hat{\rho}CC^\dagger). \end{aligned} \quad (2.3.21)$$

Здесь $\hat{H} = \hbar\omega(C^\dagger C + 1/2)$ – гамильтониан изолированного одномодового поля с частотой ω (в отсутствие взаимодействия с резервуаром), C^\dagger и C – операторы рождения и уничтожения фотонов, подчиняющиеся коммутационному соотношению $[C, C^\dagger] = 1$, постоянная γ определяет интенсивность взаимодействия поля с резервуаром и, тем самым, скорость релаксации, \bar{N} – средняя населенность осцилляторов в резервуаре ($\bar{N} \rightarrow 0$ при $T \rightarrow 0$). Уравнение (21) записано в операторной форме. Для матричных элементов в энергетическом представлении из него следует аналог (16). Отметим, что учет шумов в уравнении для матрицы плотности нужен для решения ряда принципиальных вопросов, например, о соотношении между гистерезисом в классическом нелинейном осцилляторе и в квантовомеханическом ангармоническом осцилляторе, моделирующем молекулярные колебания. Этот вопрос не столь прост, поскольку классическое уравнение Дуффинга принадлежит к числу нелинейных, а уравнение Неймана – линейных уравнений; для последних возможность гистерезисных явлений далеко не очевидна. Для последовательного решения в уравнении Неймана необходимо сохранять шумы, то есть использовать уравнение вида (21). Тогда оказывается, что квантовое рассмотрение (с учетом шумов) приводит к «биметастабильности», то есть двум различным состояниям системы с конечным временем жизни каждого из них, так что соответствие с классическим описанием имеется [30]. Впрочем, подобная «биметастабильность» присуща и классическим системам с шумами. В дальнейшем мы пренебрегаем наличием шумов, сохраняя в управляющем уравнении вида (16) проявления резервуара только в виде релаксации.

Выше мы анализировали случай однородного уширения с неподвижными частицами. В газе при температурах, при которых доплеровское уширение превышает однородное, следует вводить матрицу плотности, зависящую и от скорости частицы $\hat{\rho} = \hat{\rho}(\mathbf{r}, t, \mathbf{v})$. Уравнение Неймана для такой матрицы плотности в простейшей форме вместо (16) принимает вид

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \mathbf{v}\nabla \right) \rho_{mn} + i\omega'_{mn}\rho_{mn} + \frac{i}{\hbar}[\hat{V}, \hat{\rho}]_{mn} = \begin{cases} \sum_k (w_{km}\rho_{kk} - w_{mk}\rho_{mm}) & \text{при } m = n, \\ -\gamma_{mn}\rho_{mn} & \text{при } m \neq n. \end{cases} \quad (2.3.22)$$

Результаты нужно усреднить по функции распределения по скоростям, которая для идеального газа с температурой T и массой атомов M является максвелловским распределением

$$W(\mathbf{v}) = \frac{1}{(\sqrt{\pi\bar{v}})^3} \exp\left[-\left(\frac{\mathbf{v}}{\bar{v}}\right)^2\right], \quad \bar{v}^2 = \frac{2k_B T}{M}. \quad (2.3.23)$$

Более полное описание, включая различные модели атомных столкновений, можно найти в монографии [18].

2.3.2. Матрица плотности двухуровневой схемы и уравнения Блоха

Как и в случае аппарата уравнения Шредингера (п. 2.2), важной задачей является рассмотрение резонансного электродипольного взаимодействия двухуровневого атома с оптическим излучением (рис. 2.5). Условия применимости такого рассмотрения совпадают с приведенными в п. 2.2, влиянием шумов пренебрегаем. Сохраняем в (16) только элементы матрицы плотности с индексами 1 и 2, считая нижний энергетический уровень 1 основным. Положив $\gamma_{12} = \gamma_{\perp}$, $V_{12} = V_{21} = \tilde{V} = -\mathbf{d}_{21} \tilde{\mathbf{E}}$, $\text{Im} \mathbf{d}_{21} = 0$, запишем (16) в виде (напомним, что $\rho_{12} = \rho_{21}^*$)

$$\frac{d\rho_{11}}{dt} = w_{21}\rho_{22} - w_{12}\rho_{11} - \frac{i}{\hbar}\tilde{V}(\rho_{21} - \rho_{12}), \quad (2.3.24)$$

$$\frac{d\rho_{22}}{dt} = w_{12}\rho_{11} - w_{21}\rho_{22} + \frac{i}{\hbar}\tilde{V}(\rho_{21} - \rho_{12}), \quad (2.3.25)$$

$$\frac{d\rho_{21}}{dt} = -i\omega_{21}\rho_{21} - \gamma_{\perp}\rho_{21} - \frac{i}{\hbar}\tilde{V}(\rho_{11} - \rho_{22}). \quad (2.3.26)$$

Поляризованность пропорциональна концентрации атомов N_0 :

$$\tilde{\mathbf{P}} = N_0 \text{Sp}(\hat{\mathbf{d}}\hat{\rho}) = N_0 \mathbf{d}_{21}(\rho_{12} + \rho_{21}) = 2N_0 \mathbf{d}_{21} \text{Re} \rho_{12}. \quad (2.3.27)$$

В отсутствие электромагнитного поля ($\tilde{V} = 0$, ср. с (20))

$$\rho_{11} = \rho_{11}^{eq} = \frac{w_{21}}{w_{21} + w_{12}}, \quad \rho_{22} = \rho_{22}^{eq} = \frac{w_{12}}{w_{21} + w_{12}}, \quad \rho_{12} = \rho_{21} = 0. \quad (2.3.28)$$

Складывая (24) и (25), убеждаемся в сохранении населенностей

$$\frac{d}{dt}(\rho_{11} + \rho_{22}) = 0. \quad (2.3.29)$$

С учетом нормировки (9) можно считать $\rho_{11} + \rho_{22} = 1$. Это соотношение позволяет записать (24)-(26) в более простом виде

$$\frac{d\delta\rho}{dt} = \gamma_{\square}(\delta\rho^{eq} - \delta\rho) + \frac{4}{\hbar}\tilde{V} \text{Im} \rho_{21}, \quad (2.3.30)$$

$$\frac{d\rho_{21}}{dt} = -(\gamma_{\perp} + i\omega_{21})\rho_{21} - \frac{i}{\hbar}\tilde{V}\delta\rho.$$

Здесь $\delta\rho = \rho_{11} - \rho_{22}$ – разность населенностей, $\delta\rho^{eq} = \frac{w_{21} - w_{12}}{w_{21} + w_{12}}$ – ее равновесное значение в отсутствие внешнего поля и $\gamma_{\square} = w_{21} + w_{12}$ – скорость «продольной» релаксации.

Полезно сравнить установившийся режим для резонансного взаимодействия двухуровневых атомов с монохроматическим излучением при использовании уравнения Шредингера (п. 2.2) и уравнений для матрицы плотности (30). Вновь принимаем для поля запись (2.2.16) и используем приближение вращающейся волны (пренебрежение быстро осциллирующими экспонентами). Тогда элемент ρ_{21} зависит от времени как $\exp(-i\omega t)$, ввиду чего целесообразно ввести замену $\rho_{21} = \sigma \exp(-i\omega t)$. При этом в установившемся режиме (30) сводятся к алгебраическим уравнениям:

$$\begin{aligned} \gamma_{\square}(\delta\rho^{eq} - \delta\rho) + \frac{id_{21}}{\hbar}(E^* \sigma - E \sigma^*) &= 0, \\ (i\delta\omega + \gamma_{\perp})\sigma - \frac{id_{21}}{2\hbar} E \delta\rho &= 0. \end{aligned} \quad (2.3.31)$$

Здесь $\delta\omega = \omega_{21} - \omega$ – частотная расстройка. Нетрудно решить (31) в общем случае. Для сопоставления с п. 2.2 положим, что расстройка $\delta\omega = 0$ и заселенность возбужденного уровня в отсутствие поля пренебрежимо мала ($\rho_{22}^{eq} = 0$). Тогда при использовании условия нормировки матрицы плотности и введении интенсивности излучения $I = |E|^2$ и *интенсивности насыщения*

$$I_s = \frac{\hbar^2 \gamma_{\perp} \gamma_{\square}}{d_{21}^2} \quad (2.3.32)$$

находим зависимость относительных населенностей от интенсивности

$$\delta\rho = \frac{\delta\rho^{eq}}{1 + \frac{I}{I_s}}. \quad (2.3.33)$$

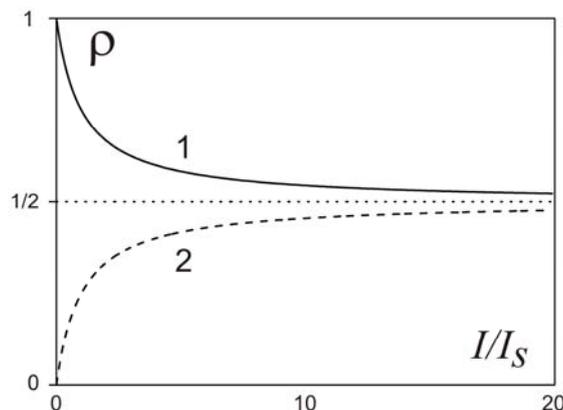


Рис. 2.6. Зависимость относительных населенностей основного (1) и возбужденного (2) уровней от интенсивности резонансного излучения (в единицах интенсивности насыщения I_s).

Эта зависимость (рис. 2.6, где для простоты считается $\delta\rho^{eq} = 1$) демонстрирует *эффект насыщения*. Видно, что с ростом интенсивности убывание населенности основного состояния и возрастание населенности возбужденного состояния ослабляется, и при $I \square I_s$ эти населенности выравниваются ($\rho_{11} \rightarrow 1/2, \rho_{22} \rightarrow 1/2$). Качественное отличие от результата (2.2.23) (периодические осцилляции с частотой Раби) вызвано тем, что здесь мы рассматриваем режим, устанавливающийся при учете релаксации. Соответственно, пренебрежение влиянием релаксации оправдано только для времен, меньших времени поперечной релаксации γ_{\perp}^{-1} (напомним, что $\gamma_{\perp} \geq \gamma_{\square}$). Еще один вывод из (33) заключается в том, что разложение элементов матрицы плотности и, соответственно, поляризованности в ряд теории возмущений по степеням амплитуды поля сходится только при $I < I_s$ и расходится при интенсивностях излучения, превышающих интенсивность насыщения. Это обстоятельство ограничивает ценность теории возмущений в задачах резонансного взаимодействия излучения со средой и делает форму (33) предпочтительной по сравнению с несколькими первыми членами ее разложения.

Задание 2.8. Оценить интенсивность насыщения (в единицах Вт/см²) для разрешенных электродипольных переходов в атомарных газах.

Задание 2.9. Найти и проанализировать решение (31) в общем случае.

Уравнения (24)-(26) или (30) справедливы и в случае немонахроматического (но квазимонохроматического для соблюдения условий применимости двухуровневой схемы) излучения, например, импульсов. Нетрудно видеть, что после окончания импульса недиагональный элемент матрицы плотности, а с ним и поляризованность среды приближается к нулю, в связи с чем здесь отсутствует упоминавшийся в п. 2.2 парадокс с высвечиванием осциллирующим диполем бесконечной энергии. Если длительность импульса много меньше времен релаксации, то при нахождении отклика среды на таких временах можно пренебречь членами, содержащими $\gamma_{\square\perp}$. Тогда решение этих уравнений существенно упрощается и приводит к интересным нестационарным эффектам, рассматриваемым в следующей части Пособия. Если же длительность импульса сопоставима с временами релаксации, то пренебрежение релаксацией невозможно. В этом случае удобно

преобразовать уравнения (30) к вещественной форме, выразив мнимую часть недиагонального элемента ρ_{21}'' через его вещественную часть ρ_{21}' :

$$\rho_{21}'' = \frac{1}{\omega_{21}} \left(\frac{d\rho_{21}'}{dt} + \gamma_{\perp} \rho_{21}' \right). \quad (2.3.34)$$

Кроме того, перейдем к уравнениям для макроскопических переменных: поляризованности $\tilde{\mathbf{P}}$ (27) и разности населенностей

$$N = N_0 \delta\rho. \quad (2.3.35)$$

Тогда вместо (30) получим *уравнения Блоха*:

$$\frac{d^2 \tilde{\mathbf{P}}}{dt^2} + 2\gamma_{\perp} \frac{d\tilde{\mathbf{P}}}{dt} + (\omega_{21}^2 + \gamma_{\perp}^2) \tilde{\mathbf{P}} = \frac{2\omega_{21}}{\hbar} (\mathbf{d}_{21} \tilde{\mathbf{E}}) \mathbf{d}N, \quad (2.3.36)$$

$$\frac{dN}{dt} = -\gamma_{\square} (N - N^{eq}) - \frac{2}{\hbar\omega_{21}} \tilde{\mathbf{E}} \left(\frac{d\tilde{\mathbf{P}}}{dt} + \gamma_{\square} \tilde{\mathbf{P}} \right), \quad (2.3.37)$$

где введено равновесное значение разности населенностей

$$N^{eq} = N_0 (\rho_{11}^{eq} - \rho_{22}^{eq}). \quad (2.3.38)$$

Следующее упрощение связано с применявшимся выше приближением вращающейся волны (медленно меняющихся амплитуд), оправданным ввиду слабости релаксации ($\gamma_{\square, \perp} \ll \omega_{21}$) и квазимонохроматичности излучения (с несущей частотой ω). Представим поле в форме (2.2.16) и аналогично поляризованность в виде

$$\tilde{\mathbf{P}} = \frac{1}{2} \{ \mathbf{P} \exp(-i\omega t) + \mathbf{P}^* \exp(i\omega t) \}. \quad (2.3.39)$$

В указанных приближениях получим упрощенный вариант уравнений Блоха:

$$\frac{d\mathbf{P}}{dt} + [\gamma_{\perp} + i(\omega_{21} - \omega)] \mathbf{P} = \frac{i}{\hbar} (\mathbf{d}_{21} \mathbf{E}) \mathbf{d}_{21} N, \quad (2.3.40)$$

$$\frac{dN}{dt} = -\gamma_{\square} (N - N^{eq}) + \frac{1}{\hbar} \text{Im}(\mathbf{E} \mathbf{P}^*). \quad (2.3.41)$$

Дальнейшие упрощения связаны с характерным для конденсированных сред сильным различием релаксационных постоянных:

$$\gamma_{\square} \gg \gamma_{\perp}. \quad (2.3.42)$$

При этом поляризованность \mathbf{P} устанавливается гораздо быстрее разности населенностей N . Поэтому из (40) следует приближенное соотношение

$$\mathbf{P} \approx \frac{i(\mathbf{d}_{21} \mathbf{E}) \mathbf{d}_{21} N}{\hbar [\gamma_{\perp} + i(\omega_{21} - \omega)]}, \quad (2.3.43)$$

после чего (41) представляется в виде (*адиабатическое исключение поляризованности*):

$$\frac{dN}{dt} = -\gamma_{\square} (N - N^{eq}) - \frac{|\mathbf{d}_{21} \mathbf{E}|^2}{\hbar^2} \frac{\gamma_{\perp}}{\gamma_{\perp}^2 + (\omega_{21} - \omega)^2} N. \quad (2.3.44)$$

Наконец, если характерная скорость изменения населенностей γ_{\square} превышает характерную скорость изменения огибающей поля излучения, то возможно и *адиабатическое исключение населенностей* с приближенным решением (44)

$$N = N^{eq} / \left\{ 1 + \frac{\gamma_{\perp}}{\gamma_{\perp}^2 + (\omega_{21} - \omega)^2} \frac{|\mathbf{d}_{21} \mathbf{E}|^2}{\hbar^2 \gamma_{\square}} \right\}. \quad (2.3.45)$$

Последнее соотношение отвечает (при точном резонансе) выражениям (33) для случая монохроматического излучения, но теперь здесь допускается медленное изменение огибающей поля. По аналогии с терминологией, сложившейся в динамике лазеров, такие двухуровневые системы можно отнести, соответственно, к классу *A* (быстрые или безынерционные нелинейности, соотношение (45)), *B* (уравнение (44)) и *C* (уравнения (40) и (41)).

Уравнения Блоха и их модификации широко используются в качестве материальных уравнений не только для газов, но и для конденсированных сред, включая полупроводники. Для учета диффузии в среде в правую часть (44) включается дополнительный член $D\Delta N$, где D – коэффициент диффузии. Описание температурных зависимостей параметров требует дополнительного привлечения уравнения теплопроводности.

2.3.3. Диполь-дипольное взаимодействие в наноструктурах

Выше мы считали, что частицы среды взаимодействуют только с оптическим излучением, но не между собой. Пренебрежение взаимодействием частиц оправдано при их малой концентрации, но может нарушаться, например, в наноструктурах. В этом разделе мы рассмотрим, следуя [31], такое взаимодействие в линейных молекулярных агрегатах, моделируемых цепочкой одинаковых двухуровневых систем.

Схема агрегата приведена на рис. 2.7. Молекулы-диполи расположены на прямой – оси x – на расстоянии a друг от друга. Уравнения Неймана в так называемом одномолекулярном варианте матрицы плотности для k -ой молекулы в пренебрежении релаксационными процессами имеют вид (24)-(26) при $\gamma_{\square} = \gamma_{\perp} = 0$:

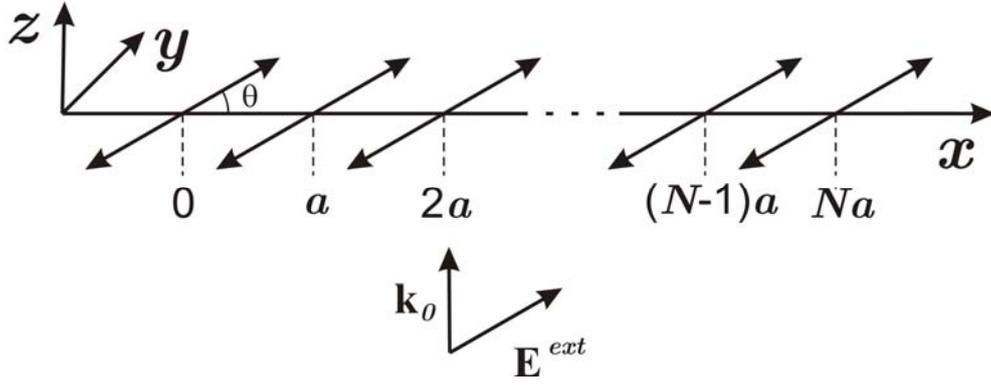


Рис. 2.7. Линейный молекулярный агрегат из N молекул-диполей, направленных в плоскости (x,y) под углом θ к оси агрегата x и возбуждаемых плоской волной монохроматического излучения с частотой ω_0 , волновым вектором \mathbf{k}_0 , параллельным оси z , и электрической напряженностью $\tilde{\mathbf{E}}^{ext}$, параллельной направлению диполей.

$$\frac{d\rho_{11}^{(k)}}{dt} = \frac{i}{\hbar}(\mathbf{d}, \tilde{\mathbf{E}}_k)(\rho_{21}^{(k)} - \rho_{12}^{(k)}), \quad (2.3.46)$$

$$\frac{d\rho_{22}^{(k)}}{dt} = -\frac{i}{\hbar}(\mathbf{d}, \tilde{\mathbf{E}}_k)(\rho_{21}^{(k)} - \rho_{12}^{(k)}), \quad (2.3.47)$$

$$\frac{d\rho_{21}^{(k)}}{dt} = -i\omega_{21}\rho_{21}^{(k)} + \frac{i}{\hbar}(\mathbf{d}, \tilde{\mathbf{E}}_k)(\rho_{11}^{(k)} - \rho_{22}^{(k)}). \quad (2.3.48)$$

Здесь $\tilde{\mathbf{E}}_k$ – напряженность электрического поля, действующего на k -ую молекулу, и состоящего из внешнего поля $\tilde{\mathbf{E}}^{ext}$ и полей остальных молекул

$$\tilde{\mathbf{E}}_k = \tilde{\mathbf{E}}^{ext} + \sum_{\substack{l=1 \\ l \neq k}}^N \tilde{\mathbf{E}}_{lk}. \quad (2.3.49)$$

Внешнее поле считается плоской монохроматической волной с частотой ω_0 , волновым вектором \mathbf{k}_0 , параллельным оси z , и электрической напряженностью $\tilde{\mathbf{E}}^{ext}$, параллельной направлению диполей. Поле, излучаемое l -ой молекулой, рассматривается как поле классического диполя с дипольным моментом, равным среднему значению квантового дипольного момента

$$\mathbf{d}_l(t) = \mathbf{d}[\rho_{12}^{(l)}(t) + \rho_{21}^{(l)}(t)]. \quad (2.3.50)$$

Решение этой классической задачи об излучении диполя хорошо известно [9]:

$$\tilde{\mathbf{E}}_{lk}(t) = \left[3\frac{d_l(t')}{r_{lk}^5} + 3\frac{\dot{d}_l(t')}{cr_{lk}^4} + \frac{\ddot{d}_l(t')}{c^2r_{lk}^3} \right] (\mathbf{n}, \mathbf{r}_{lk}) \mathbf{r}_{lk} - \left[\frac{d_l(t')}{r_{lk}^3} + \frac{\dot{d}_l(t')}{cr_{lk}^2} + \frac{\ddot{d}_l(t')}{c^2r_{lk}} \right] \mathbf{n}, \quad (2.3.51)$$

где $t' = t - r_{lk}/c$, $\mathbf{n} = \mathbf{d}/d$ и $\mathbf{r}_{lk} = (l-k)a\mathbf{e}_x$.

Далее вновь используется приближение вращающейся волны (медленно меняющихся амплитуд), причем медленные переменные (огибающие) вводятся следующими соотношениями:

$$\begin{aligned}\tilde{\mathbf{E}}_k(t) &= \frac{1}{2} \mathbf{E}_k(t) \exp(-i\omega_0 t) + \text{к.с.}, \\ \tilde{\mathbf{E}}^{(ext)}(t) &= \frac{1}{2} \mathbf{E}^{(ext)}(t) \exp(-i\omega_0 t) + \text{к.с.}, \\ \tilde{\mathbf{E}}_{lk}(t) &= \frac{1}{2} \mathbf{E}_{lk}(t) \exp(-i\omega_0 t) + \text{к.с.}, \\ \rho_{21}^{(k)}(t) &= \frac{1}{2} R_k(t) \exp(-i\omega_0 t).\end{aligned}\tag{2.3.52}$$

Подстановка (52) в (49) и (51) позволяет выразить огибающие полей в виде

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_{lk}(t) &= \left\{ \left[3 \frac{1}{r_{lk}^5} - 3i \frac{k_0}{cr_{lk}^4} - \frac{k_0^2}{c^2 r_{lk}^3} \right] (\mathbf{d}, \mathbf{r}_{lk}) \mathbf{r}_{lk} - \right. \\ &\quad \left. - \left[\frac{1}{r_{lk}^3} - i \frac{k_0}{cr_{lk}^2} - \frac{k_0^2}{c^2 r_{lk}} \right] \mathbf{d} \right\} R_l(t') \exp(ik_0 r_{lk}),\end{aligned}\tag{2.3.53}$$

$$\mathbf{E}_k(t) = \mathbf{E}^{ext}(t) + \sum_{\substack{l=1 \\ l \neq k}}^N \tilde{\mathbf{E}}_{lk}(t).\tag{2.3.54}$$

Далее эффектами запаздывания пренебрегаем ($t' \rightarrow t$), что оправдано ввиду не слишком большой длины цепочки молекул.

Подставляя (52) в (46)-(48) и пренебрегая быстро осциллирующими членами, получим окончательную систему уравнений для медленно меняющихся амплитуд:

$$\begin{aligned}\dot{R}_k &= -i\delta\omega R_k + i \sum_{\substack{l=1 \\ l \neq k}}^N (\Delta_{lk} - i\Gamma_{lk}) R_l Z_k - i\Omega Z_k, \\ \dot{Z}_k &= \frac{i}{2} \sum_{\substack{l=1 \\ l \neq k}}^N \Delta_{lk} (R_k R_l^* - R_k^* R_l) - \frac{1}{2} \sum_{\substack{l=1 \\ l \neq k}}^N \Gamma_{lk} (R_k R_l^* + R_k^* R_l) + \frac{i}{2} \Omega (R_k^* - R_k),\end{aligned}\tag{2.3.55}$$

где $\delta\omega = \omega_{21} - \omega_0$ – частотная расстройка, $\Omega = dE^{(ext)} / \hbar$ – частота Раби для внешнего поля, $Z_k = \rho_{22}^{(k)} - \rho_{11}^{(k)}$ – разность населенностей для k -ой молекулы, а матрица $\Delta_{lk} - i\Gamma_{lk}$ представляет внутримолекулярное взаимодействие через излучение:

$$\Delta_{lk} = \frac{d^2}{\hbar a^3} \left[\frac{\cos(k_0 a |l-k|)}{|l-k|^3} + k_0 a \frac{\sin(k_0 a |l-k|)}{|l-k|^2} \right] \times$$

$$\Gamma_{lk} = \frac{d^2}{\hbar a^3} \left\{ \left[k_0 a \frac{\cos(k_0 a |l-k|)}{|l-k|^2} - \frac{\sin(k_0 a |l-k|)}{|l-k|^3} \right] \times \right. \\ \left. \times (1 - 3 \cos^2 \theta) - (k_0 a)^2 \frac{\cos(k_0 a |l-k|)}{|l-k|} \sin^2 \theta \right\}, \quad (2.3.56)$$

$$\times (1 - 3 \cos^2 \theta) + (k_0 a)^2 \frac{\sin(k_0 a |l-k|)}{|l-k|} \sin^2 \theta \left. \right\}.$$

Для цепочки молекул малой длины по сравнению с длиной волны излучения ($Na \ll \lambda_0 = 2\pi/k_0$) матрица Δ_{lk} описывает стандартное парное диполь-дипольное взаимодействие молекул

$$\Delta_{lk} = \frac{d^2}{\hbar r_{lk}^3} (1 - 3 \cos^2 \theta), \quad (2.3.57)$$

а Γ_{lk} сводится к половине скорости естественного распада изолированной молекулы:

$$\Gamma_{lk} = \frac{2d^2 k_0^3}{3\hbar} = \frac{1}{2} \gamma_0. \quad (2.3.58)$$

Отметим, что из (55) следует

$$\frac{d}{dt} (|R_k|^2 + Z_k^2) = 0, \quad k = 1, 2, \dots, N. \quad (2.3.59)$$

Смысл сохранения соответствующих N величин будет обсужден позже.

2.3.4. Теория возмущения для матрицы плотности

Получить точные решения уравнения Неймана, как в п. 2.3.2, удастся только в исключительных случаях. Чаще всего уравнения Неймана решается методом теории возмущений, где малым параметром служит потенциал взаимодействия системы с излучением \mathcal{E} , который должен быть мал по сравнению с атомной напряженностью (напряженностью кулоновского поля ядра на расстоянии первой боровской орбиты). В действительности вопрос о сходимости ряда теории возмущений не столь прост, и ранее мы встречались с примерами гораздо меньших радиусов сходимости (см., например, п. 2.3.2). Далее, в современных лазерных установках уже достигаются и большие значения напряженности поля. Но еще важнее, что при практической реализации такого разложения обычно игнорируются динамические степени свободы среды, то есть считается, что она следит за полем (времена релаксации среды много меньше характерных времен изменения огибающей поля). Поэтому возможность разложения по степеням поля следует проверять в каждой конкретной задаче. Тем не менее, в этом разделе мы применим теорию возмущений для решения уравнения (16), которое перепишем в виде

$$\frac{d\rho_{mn}}{dt} + i\omega_{mn}\rho_{mn} + \frac{i}{\hbar}[\hat{V}, \hat{\rho}]_{mn} = \begin{cases} \sum_{l=1}^M (w_{lm}\rho_{ll} - w_{ml}\rho_{mm}) & \text{при } m = n, \\ -\gamma_{mn}\rho_{mn} & \text{при } m \neq n. \end{cases} \quad (2.3.60)$$

Здесь M – номер уровня с наивысшей энергией среди учитываемых. Соответствующий ряд теории возмущений

$$\rho_{nm} = \rho_{nm}^{(0)} + \xi\rho_{nm}^{(1)} + \xi^2\rho_{nm}^{(2)} + \dots \quad (2.3.61)$$

После подстановки (61) в (60) и разделения членов разного порядка малости получим уравнения для составляющих матрицы плотности различных порядков. Для недиагональных элементов матрицы плотности ($n \neq m$) они имеют вид

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{nm}^{(0)}}{dt} + i\omega_{nm}\rho_{nm}^{(0)} + \gamma_{nm}\rho_{nm}^{(0)} &= 0, \\ \frac{d\rho_{nm}^{(1)}}{dt} + i\omega_{nm}\rho_{nm}^{(1)} + \gamma_{nm}\rho_{nm}^{(1)} &= -\frac{i}{\hbar}[\mathcal{V}, \rho^{(0)}]_{nm}, \\ \frac{d\rho_{nm}^{(2)}}{dt} + i\omega_{nm}\rho_{nm}^{(2)} + \gamma_{nm}\rho_{nm}^{(2)} &= -\frac{i}{\hbar}[\mathcal{V}, \rho^{(1)}]_{nm}, \\ &\dots \\ \frac{d\rho_{nm}^{(k)}}{dt} + i\omega_{nm}\rho_{nm}^{(k)} + \gamma_{nm}\rho_{nm}^{(k)} &= -\frac{i}{\hbar}[\mathcal{V}, \rho^{(k-1)}]_{nm}, \\ &\dots \end{aligned} \quad (2.3.62)$$

Для диагональных элементов матрицы плотности

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{mm}^{(0)}}{dt} - \sum_{l=1}^M (w_{lm}\rho_{ll}^{(0)} - w_{ml}\rho_{mm}^{(0)}) &= 0, \\ \frac{d\rho_{mm}^{(1)}}{dt} - \sum_{l=1}^M (w_{lm}\rho_{ll}^{(1)} - w_{ml}\rho_{mm}^{(1)}) &= -\frac{i}{\hbar}[\hat{V}, \hat{\rho}^{(0)}]_{mm}, \\ &\dots \\ \frac{d\rho_{mm}^{(k)}}{dt} - \sum_{l=1}^M (w_{lm}\rho_{ll}^{(k)} - w_{ml}\rho_{mm}^{(k)}) &= -\frac{i}{\hbar}[\hat{V}, \hat{\rho}^{(k-1)}]_{mm}, \\ &\dots \end{aligned} \quad (2.3.63)$$

Эти системы линейных дифференциальных уравнений следует решать, последовательно увеличивая порядок теории возмущений, начиная с нулевого. Тогда правые части (62) и (63) будут известными (вычисленными на предыдущем этапе) функциями, а соответствующие однородные системы уравнений (системы (62) и (63) с нулевыми правыми частями) оказываются с постоянными коэффициентами.

В нулевом порядке теории возмущений общее решение первого уравнения (62) для недиагональных элементов матрицы плотности достаточно очевидно

$$\rho_{nm}^{(0)} = c_{nm}^{(0)} \exp[-(\gamma_{nm} + i\omega_{nm})t]. \quad (2.3.64)$$

Естественно, что в отсутствие возбуждения излучением недиагональные элементы матрицы плотности со временем убывают экспоненциально со скоростью, определяемой постоянными релаксации γ_{nm} , причем имеются также осцилляции с частотой перехода ω_{nm} . Если отвлечься от чисто релаксационных переходных процессов, то в качестве начального момента времени можно взять $t_0 = -\infty$. Тогда в соответствии с (18) для конечных времен $\rho_{nm}^{(0)} = 0$ ($n \neq m$). Установившиеся значения диагональных элементов матрицы плотности (населенности уровней) для идеального газа даются соотношением (18). Описание процесса установления требует определения характеристических чисел однородной системы уравнений

$$\frac{d\rho_{mm}^{(0)}}{dt} + \gamma_{\square m} \rho_{mm}^{(0)} - \sum_{l=1}^M \prime w_{lm} \rho_{ll}^{(0)} = 0, \quad (2.3.65)$$

где $\gamma_{\square m} = \sum_{l=1}^M \prime w_{ml}$ и штрих у суммы означает, что в ней отсутствуют члены с $l = m$. Полагая $\rho_{mm}^{(0)} \sim \exp(pt)$, получим из требования равенства нулю отвечающего (65) определителя алгебраическое уравнение M -го порядка для характеристических чисел p :

$$\text{Det} \begin{pmatrix} \gamma_{\square 1} + p & -w_{21} & \dots & -w_{M1} \\ -w_{12} & \gamma_{\square 2} + p & \dots & -w_{M2} \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ -w_{1M} & -w_{2M} & \dots & \gamma_{\square M} + p \end{pmatrix} = 0. \quad (2.3.66)$$

Соответственно, M решений (66) определяют M ветвей скоростей релаксации к равновесному распределению населенностей, причем каждая из скоростей, вообще говоря, зависит от релаксационных постоянных всех уровней и переходов. Однако, из сохранения суммарной заселенности уровней при изменении времени следует, что один из характеристических показателей тождественно обращается в нуль, $p_1 = 0$, что отвечает условию

$$\text{Det} \begin{pmatrix} \gamma_{\square 1} & -w_{21} & \dots & -w_{M1} \\ -w_{12} & \gamma_{\square 2} & \dots & -w_{M2} \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ -w_{1M} & -w_{2M} & \dots & \gamma_{\square M} \end{pmatrix} = 0. \quad (2.3.67)$$

Поэтому в системе (64) можно опустить одно из уравнений (для $m = 1$) и ввести отклонения населенностей от равновесных значений $\delta\rho_{nm}^{(0)} = \rho_{nm}^{(0)} - \rho_{nm}^{eq}$. Решение для этих величин будет иметь вид

суперпозиции экспоненциально убывающих со временем членов с показателями экспонент, равными характеристическим числам p_m .

Как пояснялось при обсуждении соотношения (20), в практически важном случае невысоких температур резервуара скорости переходов с нижних уровней на более высокие существенно меньше, чем в обратном направлении. Поэтому в достаточно точном приближении можно пренебречь в (65) или соответствующем уравнении для $\delta\rho_{mm}^{(0)}$ членами w_{mn} при $m > n$. В этом случае матрица в (66) становится треугольной, так что $M-1$ характеристических чисел совпадают с индивидуальными релаксационными постоянными $M-1$ возбужденных уровней: $p_m \approx -\gamma_{\square m}$ ($m = 2, 3, \dots, M$). Резко упрощается и вид самой системы (65):

$$\frac{d\delta\rho_{mm}^{(0)}}{dt} + \gamma_{\square m}\delta\rho_{mm}^{(0)} - \sum_{l=m+1}^M w_{lm}\delta\rho_{ll}^{(0)} = 0, \quad m = 2, 3, \dots, M. \quad (2.3.68)$$

Система имеет специфическую структуру, позволяющую легко решить ее, начиная с последнего уравнения ($m = M$) и затем переходя к предыдущим. Естественно, что решение также имеет вид суперпозиции убывающих со временем экспонент. Нетрудно уточнить значения характеристических показателей p_m и вид решения (65), учтя малые члены w_{mn} как поправки.

В первом и более высоких порядках теории возмущений уравнения для недиагональных элементов матрицы плотности однотипны:

$$\frac{d\rho_{nm}^{(k)}}{dt} + (\gamma_{nm} + i\omega_{nm})\rho_{nm}^{(k)} = -\frac{i}{\hbar}[\hat{V}, \hat{\rho}^{(k-1)}]_{nm}, \quad k \geq 1, n \neq m. \quad (2.3.69)$$

Как уже пояснялось, правая часть (69) известна из решения уравнения для матрицы плотности в низших порядках теории возмущений. Решение (69) можно найти методом вариации постоянных [32]. Для этого заметим, что отвечающее (69) однородное уравнение имеет решение

$$\rho_{nm}^{(k)} = c_{nm}^{(k)} \exp[-(\gamma_{nm} + i\omega_{nm})t], \quad (2.3.70)$$

где $c_{nm}^{(k)}$ – постоянная. Ищем решение неоднородного уравнения (69) в виде

$$\rho_{nm}^{(k)} = c_{nm}^{(k)}(t) \exp[-(\gamma_{nm} + i\omega_{nm})t]. \quad (2.3.71)$$

Подстановка (71) в (69) позволяет найти $c_{nm}^{(k)}(t)$, после чего решение (69) с начальным условием

$$\rho_{nm}^{(k)} \rightarrow 0 \quad \text{при} \quad t \rightarrow -\infty \quad (2.3.72)$$

записывается в виде

$$\rho_{nm}^{(k)}(t) = -\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t [\hat{V}, \hat{\rho}^{(k-1)}]_{nm}(t') \exp[-(\gamma_{nm} + i\omega_{nm})(t-t')] dt'. \quad (2.3.73)$$

В k -ом порядке теории возмущений уравнения для диагональных элементов матрицы плотности записывается в виде системы уравнений

$$\frac{d\rho_{mm}^{(k)}}{dt} + \gamma_{\square m} \rho_{mm}^{(k)} - \sum_{l=1}^M w_{lm} \rho_{ll}^{(k)} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{V}, \hat{\rho}^{(k-1)}]_{mm}. \quad (2.3.74)$$

Это неоднородная система линейных дифференциальных уравнений с постоянными коэффициентами. Отметим, что отвечающая (74) однородная система при любых k имеет тот же вид, как в нулевом порядке. Поэтому ее характеристические показатели можно считать известными, ввиду чего система решается тем же методом вариации постоянных. Решение значительно упрощается при использованном выше пренебрежении членами w_{mn} при $m > n$ (заселением под действием резервуара с нижних уровней). Тогда система (74) сводится к следующей:

$$\frac{d\rho_{mm}^{(k)}}{dt} + \gamma_{\square m} \rho_{mm}^{(k)} - \sum_{l=m+1}^M w_{lm} \rho_{ll}^{(k)} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{V}, \hat{\rho}^{(k-1)}]_{mm}. \quad (2.3.75)$$

Как и ранее, начинаем с решения последнего уравнения ($m = M$):

$$\rho_{MM}^{(k)}(t) = -\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t [\hat{V}, \hat{\rho}^{(k-1)}]_{MM}(t') \exp[-\gamma_{\square M}(t-t')] dt'. \quad (2.3.76)$$

После нахождения $\rho_{MM}^{(k)}$ предпоследнее уравнение в (75) имеет аналогичную структуру

$$\frac{d\rho_{M-1,M-1}^{(k)}}{dt} + \gamma_{\square, M-1} \rho_{M-1,M-1}^{(k)} = F_{M-1}^{(k)}, \quad (2.3.77)$$

где правая часть уже известна:

$$F_{M-1}^{(k)} = w_{M,M-1} \rho_{MM}^{(k)} - \frac{i}{\hbar} [\hat{V}, \hat{\rho}^{(k-1)}]_{M-1,M-1}. \quad (2.3.78)$$

Решение (77) имеет вид

$$\rho_{M-1,M-1}^{(k)}(t) = \int_{-\infty}^t F_{M-1}^{(k)}(t') \exp[-\gamma_{M-1,M-1}(t-t')] dt'. \quad (2.3.79)$$

Продолжая этот процесс, записываем уравнение (75) для элемента $\rho_{mm}^{(k)}$ в виде

$$\frac{d\rho_{mm}^{(k)}}{dt} + \gamma_{\square m} \rho_{mm}^{(k)} = F_m^{(k)}, \quad (2.3.80)$$

где

$$F_m^{(k)} = \sum_{l=m+1}^M w_{lm} \rho_{ll}^{(k)} - \frac{i}{\hbar} [\hat{V}, \hat{\rho}^{(k-1)}]_{mm}. \quad (2.3.81)$$

Решение (80) аналогично (78):

$$\rho_{mm}^{(k)}(t) = \int_{-\infty}^t F_m^{(k)}(t') \exp[-\gamma_{\square m}(t-t')] dt'. \quad (2.3.82)$$

Тем самым, мы располагаем алгоритмом полного последовательного определения всех элементов матрицы плотности во всех порядках теории возмущений.

Конкретизируем вид элементов матрицы плотности в различных порядках теории возмущений в важном специальном случае, когда потенциал взаимодействия атомов с излучением \hat{V} берется в виде (2.2.15) (электродипольные переходы), а излучение состоит из набора монохроматических полей:

$$\tilde{\mathbf{E}}(t) = \frac{1}{2} \sum_f \mathbf{E}(\omega_f) \exp(-i\omega_f t). \quad (2.3.83)$$

Полное поле $\tilde{\mathbf{E}}$ вещественно, так что суммирование в (83) ведется и по положительным, и по отрицательным частотам, причем

$$\mathbf{E}(-\omega_f) = \mathbf{E}^*(\omega_f). \quad (2.3.84)$$

Очевидно, в нулевом порядке теории возмущений сохраняется общий результат (18). В первом и более высоких порядках структура элементов матрицы плотности оказывается следующей:

$$\begin{aligned} \rho_{nm}^{(1)} &= \frac{1}{2} \sum_{f_1} r_{nm;f_1}^{(1)} \exp(-i\omega_{f_1} t), \\ \rho_{nm}^{(2)} &= \frac{1}{2} \sum_{f_1, f_2} r_{nm;f_1, f_2}^{(2)} \exp[-i(\omega_{f_1} + \omega_{f_2}) t], \\ \rho_{nm}^{(3)} &= \frac{1}{2} \sum_{f_1, f_2, f_3} r_{nm;f_1, f_2, f_3}^{(3)} \exp[-i(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \omega_{f_3}) t], \\ &\dots \\ \rho_{nm}^{(k)} &= \frac{1}{2} \sum_{f_1, f_2, \dots, f_k} r_{nm;f_1, f_2, \dots, f_k}^{(k)} \exp[-i(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k}) t]. \end{aligned} \quad (2.3.85)$$

Здесь частоты ω_{f_j} берутся из набора частот, содержащихся в излучении (соотношение (83)), а коэффициенты r не зависят от времени. Определить их проще после подстановки (85) в уравнения (69) и (74) или (75), которые превращаются в алгебраические. Для недиагональных элементов таким образом сразу получаем:

$$\begin{aligned} r_{nm;f_1, f_2, \dots, f_k}^{(k)} &= \frac{1}{2\hbar} \frac{1}{\omega_{nm} - \omega_{f_1} - \omega_{f_2} - \dots - \omega_{f_k} - i\gamma_{nm}} \times \\ &\times \sum_l \left[r_{lm;f_1, f_2, \dots, f_{k-1}}^{(k-1)} (\mathbf{d}_{nl} \mathbf{E}(\omega_{f_k})) - r_{nl;f_1, f_2, \dots, f_{k-1}}^{(k-1)} (\mathbf{d}_{lm} \mathbf{E}(\omega_{f_k})) \right], \quad k \geq 1, \quad n \neq m. \end{aligned} \quad (2.3.86)$$

В первом порядке теории возмущений набор частот осцилляций матрицы плотности совпадает с набором частот поля, а коэффициенты

$$r_{nm;f_1}^{(1)} = \frac{1}{\hbar} (\rho_{nn}^{(0)} - \rho_{mm}^{(0)}) \frac{(\mathbf{d}_{nm} \mathbf{E}(\omega_{f_1}))}{\omega_{nm} - \omega_{f_1} - i\gamma_{nm}}. \quad (2.3.87)$$

Этого соотношения достаточно, так как диагональные элементы матрицы плотности в первом порядке обращаются в нуль, $r_{nn;f_1}^{(1)} = 0$. Такое утверждение согласуется со следующей из (87) пропорциональностью

коэффициента $r_{nm;f_1}^{(1)}$ разности населенностей уровней $\rho_{nm}^{(0)} - \rho_{mm}^{(0)}$. Отметим наличие резонансов ширины $\sim \gamma_{nm}$ вблизи совпадения частот излучения ω_{f_1} и частот атомных переходов ω_{nm} .

Теперь обратимся к определению диагональных элементов матрицы плотности в рамках указанной выше упрощенной схемы при $k \geq 2$. Подстановка (85) в (75) приводит к системе линейных алгебраических уравнений с треугольной матрицей:

$$[\gamma_{\square} - i(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k})]r_{11;f_1,f_2,\dots,f_k}^{(k)} - \sum_{l=2}^M w_{lm} r_{ll;f_1,f_2,\dots,f_k}^{(k)} = \frac{i}{2\hbar} \mu_{11}^{(k-1)},$$

$$[\gamma_{\square 2} - i(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k})]r_{22;f_1,f_2,\dots,f_k}^{(k)} - \sum_{l=3}^M w_{l2} r_{ll;f_1,f_2,\dots,f_k}^{(k)} = \frac{i}{2\hbar} \mu_{22}^{(k-1)},$$

...

$$[\gamma_{\square, M-1} - i(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k})]r_{M-1, M-1; f_1, f_2, \dots, f_k}^{(k)} - w_{M, M-1} r_{MM; f_1, f_2, \dots, f_k}^{(k)} = \frac{i}{2\hbar} \mu_{M-1, M-1}^{(k-1)},$$

$$[\gamma_{\square M} - i(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k})]r_{M, M; f_1, f_2, \dots, f_k}^{(k)} = \frac{i}{2\hbar} \mu_{M, M}^{(k-1)}, \quad (2.3.88)$$

где

$$\mu_{nm}^{(k-1)} = \sum_l \left[r_{ln; f_1, f_2, \dots, f_{k-1}}^{(k-1)} (\mathbf{d}_{nl} \mathbf{E}(\omega_{f_k})) - r_{nl; f_1, f_2, \dots, f_{k-1}}^{(k-1)} (\mathbf{d}_{nl} \mathbf{E}(\omega_{f_k})) \right]. \quad (2.3.89)$$

По-прежнему, эта система легко решается, начиная с последнего уравнения. При этом для величины $r_{M, M; f_1, f_2, \dots, f_k}^{(k)}$ из (88) следует соотношение

$$r_{M, M; f_1, f_2, \dots, f_k}^{(k)} = \frac{i}{2\hbar} \frac{1}{\gamma_{MM} - i(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k})} \mu_{M, M}^{(k-1)}, \quad (2.3.90)$$

которое совпадает с формулой (86) при $n = m$. После этого находим

$$r_{M-1, M-1; f_1, f_2, \dots, f_k}^{(k)} = \frac{1}{\gamma_{M-1, M-1} - i(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k})} \times \left[f_{M, M-1} \gamma_{M, M} r_{MM; f_1, f_2, \dots, f_k}^{(k)} + \frac{i}{2\hbar} \mu_{M-1, M-1}^{(k-1)} \right]. \quad (2.3.91)$$

Наконец, в общем случае

$$r_{nn; f_1, f_2, \dots, f_k}^{(k)} = \frac{1}{\gamma_{nn} - i(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k})} \left[\sum_{j=n+1}^M f_{jn} \gamma_{jj} r_{jj; f_1, f_2, \dots, f_k}^{(k)} + \frac{i}{2\hbar} \mu_{nn}^{(k-1)} \right]. \quad (2.3.92)$$

Все величины в правой части (92) уже найдены на предыдущих этапах. Естественно, что элементы матрицы плотности k -го порядка пропорциональны k -ой степени амплитуд поля. С повышением порядка

теории возмущений число резонансов (с шириной $\sim \gamma$) увеличивается. Так, во втором порядке к «линейным» резонансам при $\omega_{f_1} \approx \omega_{nm}$ добавляются «квадратичные» резонансы при $\omega_{f_1} + \omega_{f_2} \approx \omega_{nm}$ (см. (86)) и $\omega_{f_1} + \omega_{f_2} = 0$ (см. (92)). Аналогично, в k -ом порядке теории возмущений добавляются резонансы при комбинированных частотах $\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k} \approx \omega_{nm}$ и $\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k} = 0$. Эти резонансы естественно интерпретируются на языке многофотонные переходов. Отметим также, что поскольку $\gamma_{nm} > 0$, то в комплексной плоскости частот полюса (нули резонансных знаменателей) расположены в нижней полуплоскости. Это позволяет получить отвечающие принципу причинности дисперсионные соотношения между вещественными и мнимыми частями величин $r_{nm;f_1,f_2,\dots,f_k}^{(k)}$ типа соотношений Крамерса – Кронига между вещественной и мнимой частями линейной диэлектрической проницаемости [1, 2].

Таким образом, для излучения вида (83) мы получили сравнительно простую схему чисто алгебраического нахождения всех элементов матрицы плотности во всех порядках теории возмущений. В ряде практически важных случаев, например, при импульсном воздействии на среду, интерес представляет излучение в виде набора квазимонохроматических полей, когда амплитуды $\mathbf{E}(\omega_f)$ в (83) медленно меняются со временем. Соответственно, возникает вопрос о применимости представленного выше подхода. Строго говоря, ввиду наличия в отклике среды спектральных резонансов с шириной $\sim \gamma$ область применимости ограничена жестким условием: длительности импульсов или их фронтов должны заметно превышать времена релаксации γ^{-1} . Однако, это условие существенно ослабляется также в практически важном случае прозрачных нелинейных сред, то есть при попадании основной части спектра излучения и наведенных осцилляций матрицы плотности в область прозрачности среды. В этих условиях скоростью релаксации часто можно пренебречь, положив, например, в (86) $\gamma_{nm} = 0$. Тогда условием применимости приведенных результатов служит медленность изменения амплитуд поля на масштабах периода оптических колебаний $2\pi / \omega_f$ и осцилляций матрицы плотности $2\pi / (\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k})$.

В более общем случае для нахождения матрицы плотности методом теории возмущений эффективна диаграммная техника Константинова и Переля [33].

2.4. Линейные и нелинейные восприимчивости на основе матрицы плотности

Знание матрицы плотности позволяет найти поляризованность как среднее значение дипольного момента системы атомов с концентрацией N_0 (см. (2.3.27)), которое также разлагается в ряд теории возмущений вида (2.3.61):

$$\tilde{\mathbf{P}} = N_0 \text{Sp}(\hat{\mathbf{d}}\hat{\rho}) = \tilde{\mathbf{P}}^{(1)} + \xi \tilde{\mathbf{P}}^{(2)} + \xi^2 \tilde{\mathbf{P}}^{(3)} + \dots \quad (2.4.1)$$

Здесь

$$\tilde{\mathbf{P}}^{(k)} = N_0 \text{Sp}(\hat{\mathbf{d}}\hat{\rho}^{(k)}) = N_0 \sum_{nm} \rho_{nm}^{(k)} \mathbf{d}_{mn}. \quad (2.4.2)$$

Для поля в виде (2.3.83) последнее соотношение записывается в виде

$$\tilde{\mathbf{P}}^{(k)} = \frac{1}{2} \sum_{f_1, f_2, \dots, f_k} \mathbf{P}^{(k)}(\omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \dots, \omega_{f_k}) \exp[-i(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k})t]. \quad (2.4.3)$$

где

$$\mathbf{P}^{(k)}(\omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \dots, \omega_{f_k}) = N_0 \sum_{nm} \mathbf{d}_{mn} \sum_{f_1, f_2, \dots, f_k} r_{nm; f_1, f_2, \dots, f_k}^{(k)}. \quad (2.4.4)$$

Напомним, что в (3) фигурируют и положительные, и отрицательные значения частот, причем включаются и совпадающие частоты. Поэтому в терминах положительных частот поляризованность k -го порядка осциллирует на частотах $|\omega_{f_1} \pm \omega_{f_2} \pm \dots \pm \omega_{f_k}|$.

Рекуррентные соотношения для определения величин $r_{nm; f_1, f_2, \dots, f_k}^{(k)}$, пропорциональных k -ой степени амплитуд полей излучения, приведены в предыдущем разделе. Поэтому нахождение нелинейных поляризуемостей является чисто алгебраической задачей, причем громоздкость результата резко возрастает при повышении порядка теории возмущений. Далее в этом разделе мы обсудим выражения для поляризованности и восприимчивостей в различных порядках теории возмущений.

2.4.1. Первый порядок теории возмущений

В линейном режиме спектр осцилляций поляризованности совпадает со спектром излучения. Комбинируя (2.3.87) и (4) при $k = 1$, получаем

$$\mathbf{P}^{(1)}(\omega_{f_1}) = \frac{N_0}{\hbar} \sum_{nm} (\rho_{nn}^{(0)} - \rho_{mm}^{(0)}) \mathbf{d}_{mn} \frac{(\mathbf{d}_{nm} \mathbf{E}(\omega_{f_1}))}{\omega_{nm} - \omega_{f_1} - i\gamma_{nm}}. \quad (2.4.5)$$

Ввиду линейности этого выражения по \mathbf{E} можно ввести тензор линейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(1)}$:

$$\mathbf{P}^{(1)}(\omega_f) = \hat{\chi}^{(1)}(\omega_f) \mathbf{E}(\omega_f). \quad (2.4.6)$$

В покомпонентной записи

$$P_i^{(1)}(\omega_f) = \sum_j \chi_{ij}^{(1)}(\omega_f) E_j(\omega_f). \quad (2.4.7)$$

Сопоставление (5) и (7) приводит к следующим выражениям компонент тензора линейной восприимчивости

$$\begin{aligned}\chi_{ij}^{(1)}(\omega_f) &= \frac{N_0}{\hbar} \sum_{nm} (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) \frac{d_{mn}^i d_{nm}^j}{\omega_{nm} - \omega_f - i\gamma_{nm}} = \\ &= \frac{N_0}{\hbar} \sum_{nm} \rho_{mm}^{(0)} \left[\frac{d_{mn}^i d_{nm}^j}{\omega_{nm} - \omega_f - i\gamma_{nm}} + \frac{d_{nm}^i d_{mn}^j}{\omega_{nm} + \omega_f + i\gamma_{nm}} \right].\end{aligned}\quad (2.4.8)$$

В отсутствие статического магнитного поля матричные элементы \mathbf{d}_{mn} можно считать вещественными [34], при этом $\mathbf{d}_{mn} = \mathbf{d}_{nm}$. Это позволяет упростить последнее выражение в (8):

$$\chi_{ij}^{(1)}(\omega_f) = \frac{2N_0}{\hbar} \sum_{nm} \frac{\omega_{nm} \rho_{mm}^{(0)} d_{mn}^i d_{mn}^j}{\omega_{nm}^2 - (\omega_f - i\gamma_{nm})^2}.\quad (2.4.9)$$

В этом случае при больших частотах излучения $\omega_f \rightarrow \infty$ ($\omega_f \gg |\omega_{nm}|$) элементы тензора восприимчивости стремятся к нулю пропорционально ω_f^{-2} (как в классической модели Друде – Лоренца, п. 2.1).

Пропорциональность восприимчивости концентрации позволяет интерпретировать (8) и (9) как сумму *поляризуемостей* отдельных атомов и молекул $\chi_{ij}^{(1)} = N_0 \alpha_{ij}^{(1)}$. Такая аддитивность оправдана в случае малой концентрации атомов в среде. Наконец, тензор линейной диэлектрической проницаемости определяется через тензор линейной восприимчивости

$$\varepsilon_{ij}^{(1)} = \delta_{ij} + 4\pi \chi_{ij}^{(1)}.\quad (2.4.10)$$

При больших частотах излучения (превосходящих частоты атомных переходов) диэлектрическая проницаемость становится скаляром и приближается к диэлектрической проницаемости плазмы

$$\varepsilon_{ij}^{(1)} = \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \right) \delta_{ij}.\quad (2.4.11)$$

Этот вывод имеет широкую область применимости и сохраняет физический смысл даже за границами применимости электродинамики сплошных сред [2].

Для газа атомов или молекул усреднение по их случайной ориентации в (9) проводится по правилу $\langle d_{mn}^i d_{mn}^j \rangle = \langle |d_{mn}^i|^2 \rangle \delta_{nm} = \frac{1}{3} |\mathbf{d}_{mn}|^2$.

Тогда тензоры восприимчивости и, соответственно, диэлектрической проницаемости становятся диагональными:

$$\chi_{ij}^{(1)}(\omega_f) = \delta_{ij} \frac{2N_0}{3\hbar} \sum_{nm} \frac{\omega_{nm} \rho_{mm}^{(0)} |\mathbf{d}_{mn}|^2}{\omega_{nm}^2 - (\omega_f - i\gamma_{nm})^2} = \delta_{ij} \frac{2N_0}{3\hbar} \sum_{n>m} \frac{\omega_{nm} (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) |\mathbf{d}_{mn}|^2}{\omega_{nm}^2 - (\omega_f - i\gamma_{nm})^2}.\quad (2.4.12)$$

Как видно из (8) и (12), вклад перехода с частотой ω_{nm} в восприимчивость пропорционален разности заселенностей $\rho_{nm}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}$ уровней n и m . Частотная зависимость восприимчивости включает резкие резонансы на частотах излучения, близких к частотам атомных переходов ($\omega_f = \pm\omega_{nm}$) с ширинами $\sim \gamma_{nm}$. Квантовая модель согласуется с классической (п. 2.1), если в последней предположить наличие многих осцилляторов с различными резонансными частотами ω_{nm} . Комплексность восприимчивости при $\gamma_{nm} \neq 0$ отвечает наличию поглощения вследствие релаксационных процессов. Поглощение максимально для частот, близких к частотам атомных переходов; при частотных отстройках от этих резонансов, превосходящих γ_{nm} , восприимчивости вещественны и поглощение пренебрежимо мало (область прозрачности среды).

2.4.2. Второй порядок теории возмущений

В соответствии с (3) и (4)

$$\tilde{\mathbf{P}}^{(2)} = \frac{1}{2} \sum_{f_1, f_2} \mathbf{P}^{(2)}(\omega_{f_1}, \omega_{f_2}) \exp[-i(\omega_{f_1} + \omega_{f_2})t], \quad (2.4.13)$$

где

$$\mathbf{P}^{(2)}(\omega_{f_1}, \omega_{f_2}) = N_0 \sum_{nm} \mathbf{d}_{mn} \sum_{f_1, f_2} r_{nm; f_1, f_2}^{(2)}. \quad (2.4.14)$$

Если излучение монохроматично, то возможны только два варианта частот осцилляций квадратичной поляризованности: $\omega_{f_1} = \pm\omega_{f_2}$. Вариант $\omega_{f_1} = \omega_{f_2}$ с частотой осцилляций поляризованности $2\omega_{f_1}$ отвечает генерации второй гармоники (ГВГ), а вариант $\omega_{f_1} = -\omega_{f_2}$ со статической поляризованностью – оптическому выпрямлению. Если спектр излучения состоит из двух и более частот, то к этим вариантам добавляется генерация суммарных ($|\omega_{f_1}| + |\omega_{f_2}|$) и разностных ($||\omega_{f_1}| - |\omega_{f_2}||$) частот. Соотношение частот поля и осцилляций квадратичной поляризованности вновь иллюстрирует рис. 2.1, полученный в п. 2.1 для модели Друде – Лоренца с квадратичной нелинейностью.

Фигурирующие в (14) величины $r_{nm; f_1, f_2}^{(2)}$ были вычислены в п. 2.3.

Если диагональные матричные элементы электродипольного перехода обращаются в нуль ($\mathbf{d}_{nn} = 0$), то достаточно привлечь соотношения (2.3.86), справедливые при $n \neq m$, и (2.3.92). Тогда

$$\begin{aligned} r_{nm; f_1, f_2}^{(2)} &= \frac{1}{2\hbar} \frac{1}{\omega_{nm} - \omega_{f_1} - \omega_{f_2} - i\gamma_{nm}} \sum_l \left[r_{lm; f_1}^{(1)}(\mathbf{d}_{nl} \mathbf{E}(\omega_{f_2})) - r_{nl; f_1}^{(1)}(\mathbf{d}_{lm} \mathbf{E}(\omega_{f_2})) \right] = \\ &= \frac{1}{2\hbar^2} \frac{1}{\omega_{nm} - \omega_{f_1} - \omega_{f_2} - i\gamma_{nm}} \times \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \times \sum_l [(\rho_{ll}^{(0)} - \rho_{mm}^{(0)}) \frac{(\mathbf{d}_{lm} \mathbf{E}(\omega_{f_1}))}{\omega_{lm} - \omega_{f_1} - i\gamma_{lm}} (\mathbf{d}_{nl} \mathbf{E}(\omega_{f_2})) - \\
& - (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{ll}^{(0)}) \frac{(\mathbf{d}_{nl} \mathbf{E}(\omega_{f_1}))}{\omega_{nl} - \omega_{f_1} - i\gamma_{nl}} (\mathbf{d}_{lm} \mathbf{E}(\omega_{f_2}))].
\end{aligned} \tag{2.4.15}$$

Из вида (15), как и в п. 2.3, следует пропорциональность вклада различных атомных переходов разности населенностей соответствующих уровней и наличие как «однофотонных» (частота атомного перехода близка к одной из частот излучения), так и «двухфотонных» резонансов (частота атомного перехода близка к алгебраической сумме двух частот излучения) с ширинами резонансов порядка скорости поперечной релаксации. Практически важно, что попытки использовать для увеличения нелинейности однофотонные резонансы могут быть безуспешными, так как при этом увеличивается и линейное поглощение. В то же время для двухфотонных резонансов подобного препятствия не имеется (при этом заметим, что в резонансных условиях теория возмущений имеет ограниченную область применимости, как это пояснялось в п. 2.2).

То обстоятельство, что величины $r_{nm;f_1,f_2}^{(2)}$ квадратичны по амплитудам полей излучения (а иначе и не может быть во втором порядке теории возмущений), позволяет записать (14) в тензорном виде

$$\mathbf{P}^{(2)}(\omega_{f_1}, \omega_{f_2}) = \hat{\chi}^{(2)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2}) : \mathbf{E}(\omega_{f_1}) \mathbf{E}(\omega_{f_2}), \tag{2.4.16}$$

или в развернутой покомпонентной форме

$$P_i^{(2)}(\omega_{f_1}, \omega_{f_2}) = \sum_{ijk=1}^3 \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2}) E_j(\omega_{f_1}) E_k(\omega_{f_2}). \tag{2.4.17}$$

Первый частотный аргумент тензора квадратичной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ означает частоту осцилляций поляризованности, а два последующих – частоты излучения. Из сопоставления (17) с (14) и (15) следует вид элементов тензора квадратичной восприимчивости

$$\begin{aligned}
\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2}) &= \frac{N_0}{2\hbar^2} \sum_{nm} \frac{d_{mn}^i}{\omega_{nm} - \omega_{f_1} - \omega_{f_2} - i\gamma_{nm}} \times \\
& \times \sum_l \left[(\rho_{ll}^{(0)} - \rho_{mm}^{(0)}) \frac{d_{lm}^j d_{nl}^k}{\omega_{lm} - \omega_{f_1} - i\gamma_{lm}} - (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{ll}^{(0)}) \frac{d_{nl}^j d_{lm}^k}{\omega_{nl} - \omega_{f_1} - i\gamma_{nl}} \right].
\end{aligned} \tag{2.4.18}$$

Поскольку в сумме (17) встречаются подобные члены, различающиеся только порядком множителей – компонент амплитуд поля, в определении тензора квадратичной восприимчивости имеется некоторый произвол. Как это принято в теории квадратичных форм вида (17), мы можем условиться, что при одновременной замене в тензоре квадратичной

восприимчивости аргументов $\omega_{f_1} \leftrightarrow \omega_{f_2}$ и индексов $j \leftrightarrow k$ значение восприимчивости не меняется, то есть

$$\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2}) = \chi_{ikj}^{(2)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2}; \omega_{f_2}, \omega_{f_1}). \quad (2.4.19)$$

Для соблюдения этого соглашения выражение (18) следует симметризовать, приняв за новые значения $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2})$ полусумму прежних значений $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2})$ и $\chi_{ikj}^{(2)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2}; \omega_{f_2}, \omega_{f_1})$. Тогда вместо (18) получим

$$\begin{aligned} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2}) = & \frac{N_0}{4\hbar^2} \sum_{nm} \frac{d_{mn}^i}{\omega_{nm} - \omega_{f_1} - \omega_{f_2} - i\gamma_{nm}} \times \\ & \times \sum_l \left[(\rho_{ll}^{(0)} - \rho_{mm}^{(0)}) \left(\frac{d_{lm}^j d_{nl}^k}{\omega_{lm} - \omega_{f_1} - i\gamma_{lm}} + \frac{d_{lm}^k d_{nl}^j}{\omega_{lm} - \omega_{f_2} - i\gamma_{lm}} \right) - \right. \\ & \left. - (\rho_{nn}^{(0)} - \rho_{ll}^{(0)}) \left(\frac{d_{nl}^j d_{lm}^k}{\omega_{nl} - \omega_{f_1} - i\gamma_{nl}} + \frac{d_{nl}^k d_{lm}^j}{\omega_{nl} - \omega_{f_2} - i\gamma_{nl}} \right) \right]. \end{aligned} \quad (2.4.20)$$

Вдали от резонансов можно пренебречь в (20) скоростями релаксации, после чего тензор квадратичной восприимчивости становится вещественным:

$$\begin{aligned} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2}) = & \frac{N_0}{4\hbar^2} \sum_{nm} \frac{d_{mn}^i}{\omega_{nm} - \omega_{f_1} - \omega_{f_2}} \times \\ & \times \sum_l \left[(\rho_{ll}^{(0)} - \rho_{mm}^{(0)}) \left(\frac{d_{lm}^j d_{nl}^k}{\omega_{lm} - \omega_{f_1}} + \frac{d_{lm}^k d_{nl}^j}{\omega_{lm} - \omega_{f_2}} \right) - (\rho_{nn}^{(0)} - \rho_{ll}^{(0)}) \left(\frac{d_{nl}^j d_{lm}^k}{\omega_{nl} - \omega_{f_1}} + \frac{d_{nl}^k d_{lm}^j}{\omega_{nl} - \omega_{f_2}} \right) \right]. \end{aligned} \quad (2.4.21)$$

При наличии ненулевых диагональных матричных элементов $\mathbf{d}_{mn} \neq 0$ в выражениях типа (15), (19) и (20) возникают дополнительные слагаемые, вид которых также обсуждался в п. 2.3. Их нетрудно найти, воспользовавшись соотношением (2.3.92). Наиболее интересной особенностью, вносимой этими дополнительными членами, служит возникновение резонансных знаменателей вида $[(\omega_{f_1} + \omega_{f_2}) + i\gamma_{nm}]$. Соответственно, узкий резонанс с шириной порядка обратного времени жизни уровней (в отличие от одно- и многофотонных резонансов с большей шириной γ_{nm}) достигается при $\omega_{f_1} = -\omega_{f_2}$ (оптическое выпрямление), и этот резонанс не привязан к частоте какого-либо атомного перехода. Это обстоятельство может быть важным при генерации низких (например, терагерцовых) частот как разностных оптических частот.

Часто удобнее иметь дело только с положительными частотами. Тогда, полагая, что излучение состоит из двух монохроматических полей с положительными частотами ω_{f_1} и ω_{f_2} , запишем вместо (13) тензорное выражение для квадратичной поляризованности

$$\begin{aligned} \tilde{\mathbf{P}}^{(2)} = & \frac{1}{2} \{ \hat{\chi}^{(2)}(2\omega_{f_1}; \omega_{f_1}, \omega_{f_1}) : \mathbf{E}_{f_1} \mathbf{E}_{f_1} \exp(-2i\omega_{f_1}t) + \\ & + \hat{\chi}^{(2)}(2\omega_{f_2}; \omega_{f_2}, \omega_{f_2}) : \mathbf{E}_{f_2} \mathbf{E}_{f_2} \exp(-2i\omega_{f_2}t) + \\ & + \hat{\chi}^{(2)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2}) : \mathbf{E}_{f_1} \mathbf{E}_{f_2} \exp(-i(\omega_{f_1} + \omega_{f_2})t) + \\ & + \hat{\chi}^{(2)}(\omega_{f_1} - \omega_{f_2}; \omega_{f_1}, -\omega_{f_2}) : \mathbf{E}_{f_1} \mathbf{E}_{f_2}^* \exp(-i(\omega_{f_1} - \omega_{f_2})t) + \\ & + \hat{\chi}^{(2)}(0; \omega_{f_1}, -\omega_{f_1}) : \mathbf{E}_{f_1} \mathbf{E}_{f_1}^* + \hat{\chi}^{(2)}(0; \omega_{f_2}, -\omega_{f_2}) : \mathbf{E}_{f_2} \mathbf{E}_{f_2}^* + c.c. \}. \end{aligned} \quad (2.4.22)$$

Смысл отдельных слагаемых достаточно прозрачен: генерация второй гармоники (первые две строки), суммарной (третья строка) и разностной (четвертая строка) частоты и оптическое выпрямление (последняя строка). Обсуждение различных форм записи тензора квадратичной восприимчивости в пренебрежении каскадными процессами ($f_{nj} = 0$) можно найти в [35, 36]. Свойства симметрии этого тензора обсуждаются ниже в п. 2.6.

2.4.3. Третий и высшие порядки теории возмущений

Выкладки вполне аналогичны случаю второго порядка теории возмущений, но более громоздки. Поэтому здесь мы представим только их краткое изложение. Конкретизация (3) и (4) для третьего порядка теории возмущений следующая:

$$\tilde{\mathbf{P}}^{(3)} = \frac{1}{2} \sum_{f_1, f_2, f_3} \mathbf{P}^{(3)}(\omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \omega_{f_3}) \exp[-i(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \omega_{f_3})t], \quad (2.4.23)$$

где

$$\mathbf{P}^{(3)}(\omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \omega_{f_3}) = N_0 \sum_{nm} \mathbf{d}_{mn} \sum_{f_1, f_2, f_3} r_{nm; f_1, f_2, f_3}^{(3)}. \quad (2.4.24)$$

Если излучение монохроматично, так что его спектр содержит только одну частоту $\omega > 0$, то спектр кубичной поляризованности включает третью гармонику $3\omega = \omega + \omega + \omega$, а также осцилляции на той же частоте $\omega = \omega + \omega - \omega$ и $\omega = \omega - \omega + \omega$, но с амплитудой, зависящей от интенсивности излучения. Последние отвечают эффектам самовоздействия, которые будут рассмотрены в следующей части Пособия. Схема частот излучения и поляризованности совпадает с приведенной на рис. 2.2 для классического осциллятора с кубичной нелинейностью.

Для излучения с различающимися частотами спектр поляризованности более богат. Здесь достаточно рассмотреть случай трех различных частот излучения $\omega_{1,2,3} > 0$, так как отклик среды с кубичной

нелинейностью на излучение с бóльшим числом частот сводится к этому варианту. Считаем для определенности $\omega_1 \geq \omega_2 \geq \omega_3$. Соотношение частот излучения и поляризованности показано на рис. 2.8. Четыре варианта в верхнем ряду (рис. 2.8а-г) отвечают различию всех трех частот $\omega_{1,2,3}$. Однако, даже если все частоты излучения различаются, в выражении для частоты поляризованности $\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \omega_{f_3}$ каждое из слагаемых, независимо от других, может выбираться в виде $\pm\omega_1$, $\pm\omega_2$ и $\pm\omega_3$. Соответственно, возможно и совпадение частот (с различным знаком). Такие случаи иллюстрируют четыре варианта в нижнем ряду (рис. 2.8д-ж). Естественно, возможны и варианты с совпадением по модулю всех трех частот, которые совпадают с показанными на рис. 2.2.

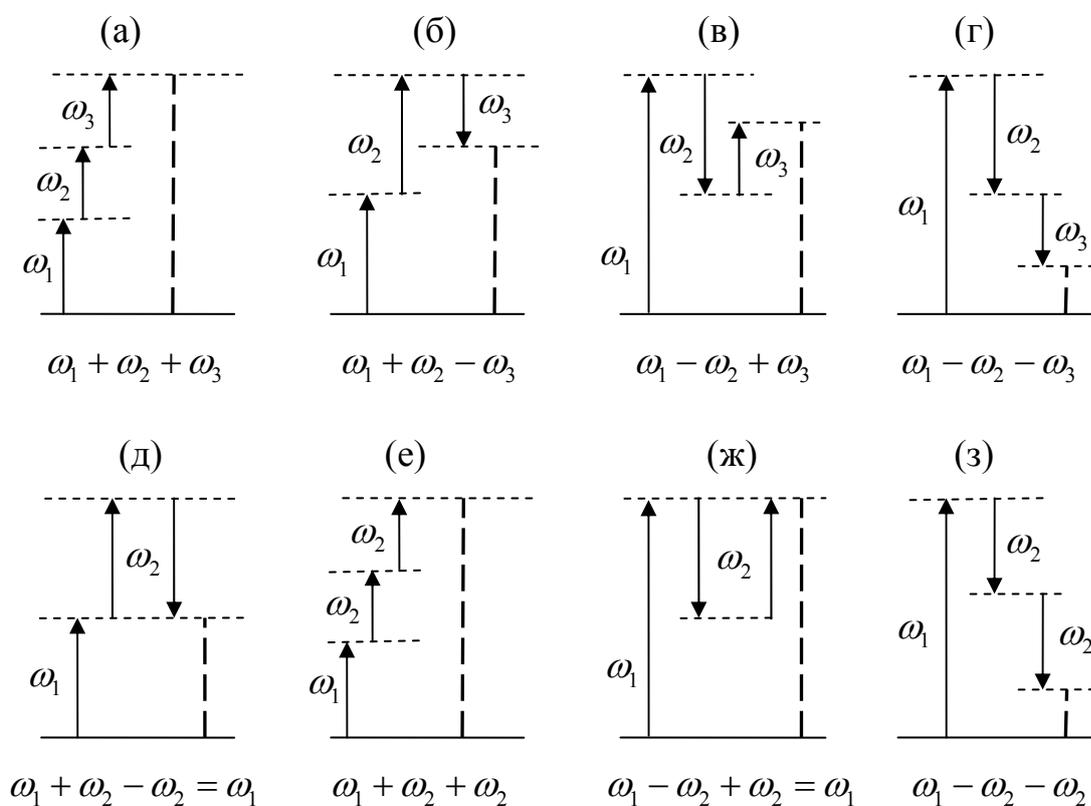


Рис. 2.8. Соотношение частот колебаний кубичной поляризованности среды (штриховые вертикальные линии, формулы для частот ниже рисунков) и излучения (сплошные вертикальные линии, частоты $\omega_{1,2,3}$).

Величины $r_{nm:f_1,f_2,f_3}^{(3)}$ в (24) выражаются через рассмотренные выше величины $r_{nm:f_1,f_2}^{(2)}$ по соотношениям (2.3.86) при $n \neq t$ и (2.3.90)-(2.3.92) при $n = t$. Как и в случае квадратичной нелинейности, если диагональные матричные элементы электродипольного перехода обращаются в нуль ($\mathbf{d}_{nn} = 0$), то достаточны соотношения (2.3.86). С их учетом

$$\mathbf{P}^{(3)}(\omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \omega_{f_3}) = \frac{N_0}{2\hbar} \sum_{nm; f_1, f_2, f_3} \frac{\mathbf{d}_{mn}}{\omega_{nm} - \omega_{f_1} - \omega_{f_2} - \omega_{f_3} - i\gamma_{nm}} \times \quad (2.4.25)$$

$$\times \sum_l \left[r_{lm; f_1, f_2}^{(2)}(\mathbf{d}_{nl} \mathbf{E}(\omega_{f_3})) - r_{nl; f_1, f_2}^{(2)}(\mathbf{d}_{lm} \mathbf{E}(\omega_{f_3})) \right].$$

Фигурирующие здесь величины $r_{lm; f_1, f_2}^{(2)}$ и $r_{nl; f_1, f_2}^{(2)}$ даются выражением (15) при $l \neq m$ и $n \neq l$, соответственно, а при совпадении этих индексов – общими соотношениями (2.3.90)–(2.3.92). Отметим здесь следующие спектральные особенности кубичной нелинейности. Ввиду формы (25) в дополнение к однофотонным и двухфотонным резонансам, отражаемым величинами $r_{lm; f_1, f_2}^{(2)}$ и $r_{nl; f_1, f_2}^{(2)}$, здесь возникает трехфотонный резонанс (с шириной порядка поперечной скорости релаксации) при совпадении частоты атомного перехода алгебраической сумме трех частот излучения ($\omega_{nm} = \omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \omega_{f_3}$). Кроме того, при учете каскадных процессов заселения уровней более высокими по энергии состояниями имеют место узкие (с шириной продольной скорости релаксации) резонансы при $\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \omega_{f_3} = 0$, вновь не привязанные к частоте атомных переходов.

Поскольку величины $r_{nm; f_1, f_2}^{(2)}$ квадратичны, а $r_{nm; f_1, f_2, f_3}^{(3)}$ кубичны по амплитудам полей излучения (в соответствии с порядком теории возмущений), можно представить (25) в тензорном виде

$$\mathbf{P}^{(3)}(\omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \omega_{f_3}) = \hat{\chi}^{(3)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \omega_{f_3}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \omega_{f_3}) : \mathbf{E}(\omega_{f_1}) \mathbf{E}(\omega_{f_2}) \mathbf{E}(\omega_{f_3}). \quad (2.4.26)$$

В покомпонентной форме

$$P_i^{(3)}(\omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \omega_{f_3}) = \sum_{ijkl=1}^3 \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \omega_{f_3}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \omega_{f_3}) E_j(\omega_{f_1}) E_k(\omega_{f_2}) E_l(\omega_{f_3}). \quad (2.4.27)$$

Как и ранее, первый частотный аргумент тензора нелинейной восприимчивости означает частоту осцилляций поляризованности, а последующие – частоты излучения. Компоненты тензора кубичной восприимчивости определяются сравнительно громоздкими выражениями для величин $r_{nm; f_1, f_2, f_3}^{(3)}$ (см., например, [35, 36]). Удобно считать, что запись (15) симметрична относительно одновременных замен частоты ω_{f_1} и индекса j на ω_{f_2} и индекс k и ω_{f_3} и индекс l , то есть

$$\begin{aligned} \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \omega_{f_3}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \omega_{f_3}) &= \chi_{ikjl}^{(3)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \omega_{f_3}; \omega_{f_2}, \omega_{f_1}, \omega_{f_3}) = \\ &= \chi_{ilkj}^{(3)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \omega_{f_3}; \omega_{f_3}, \omega_{f_2}, \omega_{f_1}). \end{aligned} \quad (2.4.28)$$

Другие свойства симметрии тензора кубичной восприимчивости обсуждаются в п. 2.6.

Аналогично (23) и (26), в высших порядках теории возмущений поляризованность имеет вид (3), причем возникают тензоры нелинейной восприимчивости более высокого порядка:

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(k)}(\omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \dots, \omega_{f_k}) = \\ = \hat{\chi}^{(k)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \dots, \omega_{f_k}) : \mathbf{E}(\omega_{f_1}) \mathbf{E}(\omega_{f_2}) \dots \mathbf{E}(\omega_{f_k}). \end{aligned} \quad (2.4.29)$$

Компоненты тензора $\hat{\chi}^{(k)}$ выражаются через найденные в п. 2.3 величины $r_{nm; f_1, f_2, \dots, f_k}^{(k)}$ с помощью соотношений (4).

Как пояснялось в п. 2.3 применительно к матрице плотности, возможно обобщение выражений вида (29) на случай набора квазимонохроматических полей, что позволило бы, например, описать случай импульсного излучения. При этом частотные изменения тензора восприимчивости в пределах ширины спектра отдельных квазимонохроматических компонент должны быть незначительны. Напомним, что восприимчивость обладает узкими резонансами вблизи совпадения частот атомных переходов с комбинациями частот излучения; соответственно, требуется, чтобы ширины спектра компонент излучения были менее скоростей релаксации. Это условие существенно ослабляется, если частоты излучения и их комбинации не попадают в область таких резонансов, тогда скоростями релаксации в выражениях для восприимчивостей можно пренебречь и они, соответственно, не фигурируют в условиях применимости подхода для импульсного излучения.

2.4.4. Фактор локального поля

В выражениях для поляризованности вида (29) \mathbf{E} имеет смысл напряженности электрического поля, действующего на отдельные атомы или молекулы, которое отличается от фигурирующего в уравнениях электродинамики сплошных сред среднего поля. Такое отличие рассматривалось в п. 2.3.3 для модели линейной цепочки диполей, взаимодействующих через излучение. Однако прямой учет диполь-дипольного взаимодействия молекул реален только для сравнительно простых моделей. Здесь мы обсудим упрощенный учет этого фактора в конденсированных средах.

Выше постулировалась аддитивность вклада в восприимчивость $\hat{\chi}^{(k)}$ отдельных атомов и молекул, когда

$$\hat{\chi}^{(k)} = N_0 \hat{\alpha}^{(k)}, \quad (2.4.30)$$

где поляризуемость $\hat{\alpha}^{(k)}$ k -го порядка является характеристикой одиночной молекулы, взаимодействующей с излучением. Это оправдано при низких концентрациях N_0 . В конденсированных средах существенным становится диполь-дипольное взаимодействие между

молекулами. Тогда выражения для тензора восприимчивости следует уточнить. Для изотропных сред и кубических кристаллов применима модель Лоренца для связи локального \mathbf{E}_{loc} и приложенного \mathbf{E} полей [9, 37]:

$$\mathbf{E}_{loc} = \mathbf{E} + \frac{4\pi}{3} \mathbf{P}. \quad (2.4.31)$$

Для слабых полей (линейный режим) отсюда следует

$$\mathbf{E}_{loc}(\omega) = \frac{1}{1 - \frac{4\pi}{3} N_0 \alpha^{(1)}(\omega)} \mathbf{E} = \frac{\varepsilon^{(1)}(\omega) + 2}{3} \mathbf{E}. \quad (2.4.32)$$

В предположении слабой нелинейности в (31) можно сохранить то же соотношение между действующим и приложенным полями. Тогда выражение (3) сохранит свою форму, но тензор восприимчивости $\hat{\chi}^{(k)}$ вместо (30) примет вид

$$\begin{aligned} \hat{\chi}^{(k)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \dots, \omega_{f_k}) = \\ = N_0 L^{(k)} \hat{\alpha}^{(k)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \dots, \omega_{f_k}), \end{aligned} \quad (2.4.33)$$

где

$$L^{(k)} = \frac{\varepsilon^{(1)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k}) + 2}{3} \times \frac{\varepsilon^{(1)}(\omega_{f_1}) + 2}{3} \times \dots \times \frac{\varepsilon^{(1)}(\omega_{f_k}) + 2}{3}. \quad (2.4.34)$$

Это выражение уже нелинейно по концентрации молекул. Интересно, что фактор $L^{(k)}$ обращается в нуль на частотах Фрелиха, при которых $\varepsilon^{(1)} = -2$ (см. п. 2.1.3). Для кристаллов другой симметрии вид фактора локального поля $L^{(k)}$ требует модификации [37].

2.5. Макромодели оптической нелинейности

Нелинейно-оптический отклик среды может определяться не только локальными характеристиками излучения, но и их градиентами. Важным примером служит действующая на среду *электрострикционная сила*, вызывающая перераспределение концентрации частиц в среде или ее плотности.

Электрострикцией называют деформацию диэлектриков, пропорциональную квадрату электрической напряженности E^2 [2]. Для изотропных сред, включая газы и жидкости, относительная объемная деформация при электрострикции в статическом поле

$$\delta V / V = A E^2, \quad (2.5.1)$$

где $A = \frac{\beta}{2\pi} \rho \frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho}$, β – сжимаемость среды, ρ – ее плотность, ε –

диэлектрическая проницаемость. В органических жидкостях (нитробензол, толуол) величина $A \sim 10^{-12}$ CGSE.

Для среды быстрые оптические колебания \tilde{E}^2 (с удвоенной оптической частотой) усредняются, так что в (1) возможна замена $\tilde{E}^2 \rightarrow |E|^2$. В прозрачной среде (без поглощения излучения) для оптических импульсов будут возникать акустические (звуковые) волны, описываемые волновым уравнением для плотности среды $\rho = \rho_0 + \delta\rho$

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial t^2} - 2\Gamma \frac{\partial}{\partial t} - v_s^2 \Delta \right) \delta\rho = -\text{div } \mathbf{f}, \quad (2.5.2)$$

где электрострикционная сила

$$\mathbf{f} = \nabla p = \frac{\gamma}{2\pi} \nabla |E|^2, \quad \gamma = \rho_0 \frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho}. \quad (2.5.3)$$

Здесь коэффициент Γ определяет затухание звука, v_s – скорость звука, p – давление.

При наличии поглощения излучения в среде происходит ее нагрев, что приводит к изменению показателя преломления из-за уменьшения плотности среды и повышения температуры

$$\delta n = \left(\frac{\partial n}{\partial \rho} \right)_T \delta\rho + \left(\frac{\partial n}{\partial T} \right)_\rho \delta T. \quad (2.5.4)$$

Обычно показатель преломления уменьшается при увеличении температуры, что отвечает самодефокусировке. Но в ряде твердых тел наблюдается и противоположная зависимость (самофокусировка).

Для описания *тепловой нелинейности* необходимо привлечь уравнение теплопроводности

$$c_p \rho \frac{\partial T}{\partial t} = \kappa \Delta T + \frac{c_p \alpha}{2\pi} |E|^2. \quad (2.5.5)$$

Здесь c_p – удельная теплоемкость (при постоянном давлении), κ – коэффициент теплопроводности, α – коэффициент поглощения. Тепловая нелинейность наблюдается для непрерывного излучения даже в случае маломощных лазеров и слабопоглощающих сред.

В более общем случае распространение интенсивного излучения в реальных средах связано с изменением температуры среды T , плотности ρ , энтропии S , концентраций C_i смесей и растворов и, возможно, других термодинамических переменных; совокупность этих переменных мы обозначим символом $\theta = (T, \rho, S, C_i, \dots)$. Линейная (комплексная) диэлектрическая проницаемость ε зависит от этих переменных при их небольших изменениях $\delta\theta$ линейно:

$$\delta\varepsilon = \frac{\partial \varepsilon}{\partial \theta} \delta\theta. \quad (2.5.6)$$

Поскольку в данном случае оптические свойства среды меняются под действием распространяющегося в ней излучения, все эти эффекты

следует причислить к нелинейно-оптическим. Существенные изменения свойств среды могут происходить даже при малой интенсивности излучения за счет, например, длительности нагрева. Поэтому эти нелинейности обычно не могут быть описаны нелинейными восприимчивостями ввиду ярко выраженной нестационарности и нелокальности механизма нелинейности.

Описание подобных «термодинамических» нелинейностей требует привлечения уравнения теплопроводности типа (5), в которое как источник тепловыделения входит интенсивность излучения, а также уравнений газо- или гидродинамики (в том числе с учетом конвективных потоков, развивающихся при нагреве среды излучением), механики твердых тел и т.д. Укажем также, что воздействие интенсивного излучения на среду выводит ее из состояния термодинамического равновесия. Поэтому в ряде случаев, особенно для коротких импульсов, среду нельзя уже характеризовать единой температурой и прочими термодинамическими параметрами. В таких ситуациях требуется привлечение кинетических уравнений для функций распределения типа уравнений Власова для плазмы [38]. Ввиду разнообразия физики явлений мы рассмотрим некоторые из них в следующей части Пособия в более конкретных ситуациях.

Как уже упоминалось, в расширенном смысле к числу нелинейно-оптических эффектов относится и классический *электрооптический эффект* – зависимость показателя преломления от статического электрического поля, а также аналогичные магнитооптический, динамооптический и другие эффекты [2]. Такая точка зрения обоснована тем, что электрооптический эффект подпадает под случай квадратичной нелинейности (п. 2.4), если одно из двух полей считать статическим. Хотя мы приняли не столь широкое определение нелинейной оптики, ограничившись чисто оптическими полями, тем не менее, электрооптический и родственные ему эффекты оказываются существенными в важном классе фотоэлектрических и фоторефрактивных эффектов. Например, в ряде полупроводников под действием излучения происходит пространственное разделение противоположно заряженных носителей (электронов и дырок). Это вызывает возникновение электростатического поля и далее, в кристаллах с пьезоэлектрическими свойствами, изменение тензора диэлектрической проницаемости. Такие эффекты, для описания которых необходимо привлечение более детальных моделей среды, будут рассмотрены в п. 2.6 и в следующей части Пособия.

2.6. Феноменологический подход

Как мы видели в п. 2.2-2.4, квантовомеханическое рассмотрение принципиально позволяет вывести материальные уравнения различных

сред. Однако в них входит чрезвычайно большое число параметров среды, которые во многих случаях, особенно для конденсированных сред, неизвестны. Это снижает практическую значимость микромоделей среды и делает необходимым развитие феноменологического подхода. Последний не основывается на конкретных моделях и использует только самые общие принципы типа причинности, симметрии и т.д. В этом разделе изложим такой подход, отвечающий разложению отклика среды в ряд по степеням амплитуды поля (как и для квантовомеханических микромоделей, область применимости ограничена нерезонансными условиями). Вместе с тем, микромодели служат важным ориентиром при формулировке феноменологических соотношений.

2.6.1. Линейный отклик среды

Начнем с линейного отклика среды и его «динамического» (в отличие от спектрального) варианта. Для замыкания уравнений Максвелла (1.2.24)-(1.2.27) нужно задать линейные (первый порядок теории возмущений) выражения для электрической $\tilde{\mathbf{D}}$ и магнитной $\tilde{\mathbf{B}}$ индукций и плотности тока $\tilde{\mathbf{j}}$ через напряженности полей $\tilde{\mathbf{E}}$ и $\tilde{\mathbf{H}}$; поскольку в среде с конечной проводимостью начальная плотность свободных зарядов экспоненциально убывает со временем, мы будем считать в (1.2.27) $\tilde{\rho} = 0$.

Вообще говоря, электрическая индукция (как и магнитная) могут зависеть от напряженностей и электрического, и магнитного полей. Как упоминалось в п. 2.1, уже в классической модели Друде – Лоренца определяющая электрическую индукцию сила Лоренца, действующая на электроны, содержит магнитную составляющую. Но эта составляющая мала ввиду малости скорости движения электрона по сравнению со скоростью света и приводит только к квадратичным нелинейно-оптическим эффектам. С другой стороны, в общем случае движущейся среды релятивистские соотношения Минковского [2] указывают на вклад магнитного поля в линейную электрическую индукцию, пропорциональный малому отношению скорости движения среды к скорости света в вакууме. Отсюда следует, что для фиксации материальных уравнений необходимо задавать распределение скорости движения среды. Далее мы будем считать среду неподвижной; обзор оптических эффектов неоднородности скорости движения можно найти в [39]. Тогда электрическая индукция будет определяться только электрической напряженностью, а магнитная индукция – магнитной напряженностью. Общий вид соответствующих линейных соотношений следующий (покомпонентная форма):

$$\tilde{D}_i(\mathbf{r}, t) = \sum_{j=1}^3 \int_{-\infty}^t dt' \int d\mathbf{r}' \varepsilon_{ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t') \tilde{E}_j(\mathbf{r}', t'),$$

$$\tilde{B}_i(\mathbf{r}, t) = \sum_{j=1}^3 \int_{-\infty}^t dt' \int d\mathbf{r}' \mu_{ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t') \tilde{H}_j(\mathbf{r}', t'), \quad (2.6.1)$$

$$\tilde{j}_i(\mathbf{r}, t) = \sum_{j=1}^3 \int_{-\infty}^t dt' \int d\mathbf{r}' \sigma_{ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t') \tilde{E}_j(\mathbf{r}', t').$$

Пределы интегрирования по времени отвечают принципу причинности, то есть зависимости отклика среды от значений возбуждающего излучения только в предшествующие моменты времени. Существенная область интегрирования по времени ограничена обратной скоростью релаксации: $0 < t - t' \leq \gamma^{-1}$. Вообще говоря, пределы интегрирования по координатам строго ограничены релятивистским принципом причинности $|\mathbf{r}' - \mathbf{r}| < c(t - t')$. Однако обычно это ограничение можно игнорировать, так как в действительности «размазанность» отклика по координатам (пространственная дисперсия) гораздо меньше величины $c\gamma^{-1}$. Поэтому пределы интегрирования по координатам можно считать бесконечными. Вместо индукций можно использовать и аналогичные выражения для поляризованностей:

$$\tilde{P}_i(\mathbf{r}, t) = \sum_{j=1}^3 \int_{-\infty}^t dt' \int d\mathbf{r}' \chi_{ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t') \tilde{E}_j(\mathbf{r}', t'), \quad (2.6.2)$$

$$\tilde{M}_i(\mathbf{r}, t) = \sum_{j=1}^3 \int_{-\infty}^t dt' \int d\mathbf{r}' v_{ij}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t, t') \tilde{H}_j(\mathbf{r}', t').$$

Явная зависимость функций отклика ε_{ij} , μ_{ij} и σ_{ij} от координаты \mathbf{r} и времени t отвечает, соответственно, неоднородности и нестационарности свойств среды. Если же среда однородна и стационарна, то функции отклика зависят только от разностей аргументов $\boldsymbol{\rho} = \mathbf{r} - \mathbf{r}'$ и $\tau = t - t'$. В этом случае, который и рассматривается далее,

$$\begin{aligned} \tilde{D}_i(\mathbf{r}, t) &= \sum_{j=1}^3 \int_0^\infty d\tau \int d\boldsymbol{\rho} \varepsilon_{ij}(\boldsymbol{\rho}, \tau) \tilde{E}_j(\mathbf{r} - \boldsymbol{\rho}, t - \tau), \\ \tilde{B}_i(\mathbf{r}, t) &= \sum_{j=1}^3 \int_0^\infty d\tau \int d\boldsymbol{\rho} \mu_{ij}(\boldsymbol{\rho}, \tau) \tilde{H}_j(\mathbf{r} - \boldsymbol{\rho}, t - \tau), \\ \tilde{j}_i(\mathbf{r}, t) &= \sum_{j=1}^3 \int_0^\infty d\tau \int d\boldsymbol{\rho} \sigma_{ij}(\boldsymbol{\rho}, \tau) \tilde{E}_j(\mathbf{r} - \boldsymbol{\rho}, t - \tau), \\ \tilde{P}_i(\mathbf{r}, t) &= \sum_{j=1}^3 \int_0^\infty d\tau \int d\boldsymbol{\rho} \chi_{ij}(\boldsymbol{\rho}, \tau) \tilde{E}_j(\mathbf{r} - \boldsymbol{\rho}, t - \tau), \\ \tilde{M}_i(\mathbf{r}, t) &= \sum_{j=1}^3 \int_0^\infty d\tau \int d\boldsymbol{\rho} v_{ij}(\boldsymbol{\rho}, \tau) \tilde{H}_j(\mathbf{r} - \boldsymbol{\rho}, t - \tau). \end{aligned} \quad (2.6.3)$$

До сих пор мы использовали вещественное представление полей, так что функции отклика ε_{ij} и т.д. вещественны. Ввиду принятой однородности и стационарности среды удобно разложить напряженности поля $\tilde{\mathbf{E}}$ и $\tilde{\mathbf{H}}$, а также индукции $\tilde{\mathbf{D}}$ и $\tilde{\mathbf{B}}$ и поляризованности $\tilde{\mathbf{P}}$ и $\tilde{\mathbf{M}}$ по плоским монохроматическим волнам:

$$\tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) = \int_{-\infty}^{\infty} d\mathbf{k} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \mathbf{E}(\omega, \mathbf{k}) \exp[i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)]. \quad (2.6.4)$$

Обратное преобразование Фурье имеет вид

$$\mathbf{E}(\omega, \mathbf{k}) = \frac{1}{(2\pi)^4} \int_{-\infty}^{\infty} d\mathbf{r} \int_{-\infty}^{\infty} dt \tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) \exp[i(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)]. \quad (2.6.5)$$

Фурье-разложения для остальных величин аналогичны. Тогда (3) запишется в виде

$$\begin{aligned} D_i(\omega, \mathbf{k}) &= \sum_{j=1}^3 \varepsilon_{ij}(\omega, \mathbf{k}) E_j(\omega, \mathbf{k}), \\ B_i(\omega, \mathbf{k}) &= \sum_{j=1}^3 \mu_{ij}(\omega, \mathbf{k}) H_j(\omega, \mathbf{k}), \\ j_i(\omega, \mathbf{k}) &= \sum_{j=1}^3 \sigma_{ij}(\omega, \mathbf{k}) E_j(\omega, \mathbf{k}), \\ P_i(\omega, \mathbf{k}) &= \sum_{j=1}^3 \chi_{ij}(\omega, \mathbf{k}) E_j(\omega, \mathbf{k}), \\ M_i(\omega, \mathbf{k}) &= \sum_{j=1}^3 \nu_{ij}(\omega, \mathbf{k}) H_j(\omega, \mathbf{k}), \end{aligned} \quad (2.6.6)$$

причем комплексные функции отклика $\varepsilon_{ij}(\omega, \mathbf{k})$ и $\mu_{ij}(\omega, \mathbf{k})$ связаны с вещественными χ_{ij} и ν_{ij} соотношениями

$$\begin{aligned} \varepsilon_{ij}(\omega, \mathbf{k}) &= \delta_{ij} + 4\pi \sum_{j=1}^3 \int_0^{\infty} d\tau \int d\mathbf{p} \chi_{ij}(\mathbf{p}, \tau) \exp[-i(\mathbf{k}\mathbf{p} - \omega\tau)], \\ \mu_{ij}(\omega, \mathbf{k}) &= \delta_{ij} - 4\pi \sum_{j=1}^3 \int_0^{\infty} d\tau \int d\mathbf{p} \nu_{ij}(\mathbf{p}, \tau) \exp[-i(\mathbf{k}\mathbf{p} - \omega\tau)]. \end{aligned} \quad (2.6.7)$$

Эти величины имеют смысл, соответственно, тензора (линейной) диэлектрической и магнитной проницаемости. Зависимость их от частоты ω означает частотную дисперсию, существенную при приближении частоты излучения к резонансным частотам среды. Зависимость от волнового числа \mathbf{k} отвечает пространственной дисперсии. Последняя в оптической области обычно мала, порядка отношения характерного размера микроструктуры среды (например, постоянной решетки

кристалла) к длине волны излучения. В пренебрежении пространственной дисперсией $\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{ij}(\omega)$, $\mu_{ij} = \mu_{ij}(\omega)$ и

$$D_i(\omega, \mathbf{r}) = \sum_{j=1}^3 \varepsilon_{ij}(\omega) E_j(\omega, \mathbf{r}), \quad B_i(\omega, \mathbf{r}) = \sum_{j=1}^3 \mu_{ij}(\omega) H_j(\omega, \mathbf{r}). \quad (2.6.8)$$

Разделение комплексной диэлектрической проницаемости и проводимости в средах с дисперсией физически неоправдано, так как оба эти фактора приводят к диссипации энергии в среде. Поэтому в оптической области частот в линейном режиме достаточно ввести вместо этих двух тензоров единый тензор комплексной диэлектрической проницаемости

$$\hat{\varepsilon}^{(c)} = \hat{\varepsilon} + i \frac{4\pi}{\omega} \hat{\sigma}. \quad (2.6.9)$$

Можно показать, что уравнения Максвелла для монохроматического излучения записываются с помощью тензоров $\hat{\varepsilon}^{(c)}$ и $\hat{\mu}$ без привлечения тензора проводимости $\hat{\sigma}$ [40]. Соответственно, мы можем ограничиться здесь анализом только $\hat{\varepsilon}^{(c)}$ и $\hat{\mu}$, опуская в дальнейшем индекс (с). В нелинейном режиме ситуация меняется, и мы вернемся к этому вопросу в п. 2.6.2.

Тензорный характер $\hat{\varepsilon}$ и $\hat{\mu}$ означает анизотропию среды. В термодинамически равновесной среде применение принципа симметрии кинетических коэффициентов приводит при отсутствии внешних магнитных полей и магнитооптических эффектов к установлению симметрии этих тензоров по индексам:

$$\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{ji}, \quad \mu_{ij} = \mu_{ji}. \quad (2.6.10)$$

При этом в областях прозрачности все элементы ε_{ij} и μ_{ij} оказываются вещественными [2]. Если же присутствует поглощение, то из принципа причинности (полюса в нижней полуплоскости комплексной частоты) следует упомянутое в п. 2.1 дисперсионное соотношение Крамерса – Кронига между вещественными и мнимыми частями тензоров. Все эти общие соотношения подтверждаются представленными выше микромоделями. Заметим, что в термодинамически неравновесной среде, например, лазерной (с усилением), формулировка дисперсионных соотношений требует уточнений.

Весьма важной является информация о пространственной симметрии системы (см., например, [37] и краткое изложение в следующем разделе). Как известно, при определенном выборе направлений – главных осей – вещественная симметричная матрица существенно упрощается и принимает диагональную форму. Элементы тензоров в других системах координат выражаются через соответствующие главные значения (диагональные элементы) линейными соотношениями. Вообще говоря, тензоры диэлектрической и магнитной

проницаемости комплексны и могли бы обладать различающимися для их вещественной и мнимой частей главными осями. Однако если эти оси связаны с определенной симметрией, например, кристаллических ячеек, то можно считать, что главные оси всех (вещественных) тензоров совпадают. В такой системе координат

$$\hat{\varepsilon} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{33} \end{pmatrix}, \quad \hat{\mu} = \begin{pmatrix} \mu_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \mu_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \mu_{33} \end{pmatrix}. \quad (2.6.11)$$

Заметим, что анизотропия поглощения, связанного с мнимыми частями тензоров, ответственна за явления дихроизма.

В изотропных средах и кристаллах кубической системы все три главных значения (диагональные элементы в (11)) совпадают:

$$\varepsilon_{ij} = \varepsilon \delta_{ij}, \quad \mu_{ij} = \mu \delta_{ij}. \quad (2.6.12)$$

В этом случае направления главных осей произвольны, что и отвечает оптической изотропии.

Если из трех главных значений тензоров совпадают два, то кристалл относится к *одноосным* (кристаллы ромбоэдрической, тетрагональной и гексагональной систем). Одна из главных осей – оптическая ось кристалла – совпадает с осью поворота на угол $2\pi/n$, $n = 3, 4, 6$; соответствующие главные значения обозначаются как ε_{\square} и μ_{\square} . Две другие главные оси, перпендикулярные между собой, расположены произвольно в плоскости, перпендикулярной оптической оси; главные значения для них обозначают через ε_{\perp} и μ_{\perp} . Тогда при выборе оптической оси вдоль z

$$\hat{\varepsilon} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{\perp} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{\perp} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{\square} \end{pmatrix}, \quad \hat{\mu} = \begin{pmatrix} \mu_{\perp} & 0 & 0 \\ 0 & \mu_{\perp} & 0 \\ 0 & 0 & \mu_{\square} \end{pmatrix}. \quad (2.6.13)$$

Наконец, при различии всех трех главных значений тензоров (кристаллы триклинной, моноклинной и ромбической систем) говорят о *двухосных кристаллах*. Заметим, что положение всех трех главных осей фиксировано кристаллографическими направлениями только в кристаллах ромбической системы. Для других же систем эти направления (все три для триклинной системы и два для моноклинной системы) зависят от частоты; в этих случаях направления главных осей для вещественных и мнимых частей тензоров $\hat{\varepsilon}$ и $\hat{\mu}$ могут различаться, так что одновременно они не будут приводиться к диагональному виду. Однако в областях оптической прозрачности мнимые части тензоров пренебрежимо малы, а для естественных оптических сред магнитная проницаемость близка к единице, так что основное значение имеет тензор вещественной части диэлектрической проницаемости.

2.6.2. Нелинейные восприимчивости

Общие соотношения

Будем считать здесь среду однородной, стационарной. Для простоты ограничимся случаем среды с магнитной проницаемостью $\mu = 1$, не обладающей пространственной дисперсией. Как и в (2.4.1) разлагаем поляризованность в ряд по степеням амплитуды излучения

$$\tilde{\mathbf{P}} = \tilde{\mathbf{P}}^{(1)} + \xi \tilde{\mathbf{P}}^{(2)} + \xi^2 \tilde{\mathbf{P}}^{(3)} + \dots \quad (2.6.14)$$

Естественным обобщением линейного соотношения (3) для поляризованности служат следующие интегральные представления (общее ввиду отсутствия пространственной дисперсии значение координаты \mathbf{r} опускаем):

$$\begin{aligned} \tilde{P}_i^{(2)}(t) &= \sum_{j_1, j_2=1}^3 \int_0^\infty d\tau_1 \int_0^\infty d\tau_2 \chi_{i, j_1 j_2}^{(2)}(\tau_1, \tau_2) \tilde{E}_{j_1}(t - \tau_1) \tilde{E}_{j_2}(t - \tau_2), \\ \tilde{P}_i^{(3)}(t) &= \sum_{j_1, j_2, j_3=1}^3 \int_0^\infty d\tau_1 \int_0^\infty d\tau_2 \int_0^\infty d\tau_3 \chi_{i, j_1 j_2 j_3}^{(3)}(\tau_1, \tau_2, \tau_3) \tilde{E}_{j_1}(t - \tau_1) \tilde{E}_{j_2}(t - \tau_2) \tilde{E}_{j_3}(t - \tau_3), \\ &\dots \\ \tilde{P}_i^{(k)}(t) &= \sum_{j_1, \dots, j_k=1}^3 \int_0^\infty d\tau_1 \dots \int_0^\infty d\tau_k \chi_{i, j_1 \dots j_k}^{(k)}(\tau_1, \dots, \tau_k) \tilde{E}_{j_1}(t - \tau_1) \dots \tilde{E}_{j_k}(t - \tau_k). \end{aligned} \quad (2.6.15)$$

При $k = 1$ определяемая (15) линейная поляризованность совпадает в указанных предположениях с выражением (3). Вообще говоря, наряду с электрической напряженностью под интегралом в (15) могут фигурировать и напряженности магнитного поля $\tilde{\mathbf{H}}$, например $\tilde{E}_{j_1}(t - \tau_1) \tilde{H}_{j_2}(t - \tau_2)$ при $k = 2$. Однако в большинстве задач их можно не включать в разложение (15). Дело в том, что электрические и магнитные компоненты оптического излучения не независимы, а связаны уравнениями Максвелла, в частности, так как само разложение (14) предполагает малость нелинейности, по порядку величины $\tilde{\mathbf{E}}$ и $\tilde{\mathbf{H}}$

совпадают ($|\tilde{\mathbf{H}}| \approx \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} |\tilde{\mathbf{E}}|$, где ε_0 и μ_0 – линейные диэлектрическая и

магнитная проницаемости). Поэтому для дополнения (15) членами с напряженностями магнитного поля нет физических оснований. Напомним, однако, что в наших обозначениях $\tilde{\mathbf{E}}$ и $\tilde{\mathbf{H}}$ быстро, с оптическими частотами, осциллируют. Поэтому здесь не идет речь об эффектах типа электрооптических или магнитооптических; для описания последних включение в разложения (15) напряженностей статических или низкочастотных магнитных полей вполне оправдано.

Будем считать, что излучение состоит из набора монохроматических полей, см. (2.3.83). Соответственно, поляризованность k -го порядка имеет

вид (2.4.3) и (2.4.30), причем развернутая форма записи (2.4.30) следующая:

$$P_i^{(k)}(\omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \dots, \omega_{f_k}) = \sum_{j_1, \dots, j_k} \chi_{i, j_1, \dots, j_k}^{(k)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \dots, \omega_{f_k}) E_{j_1}(\omega_{f_1}) E_{j_2}(\omega_{f_2}) \dots E_{j_k}(\omega_{f_k}). \quad (2.6.16)$$

Из сравнения (16) с (15) находим связь нелинейных восприимчивостей $\chi_{i, j_1, \dots, j_k}^{(k)}(\omega_{f_1} + \dots + \omega_{f_k}; \omega_{f_1}, \dots, \omega_{f_k})$ с функциями отклика $\chi_{i, j_1, \dots, j_k}^{(k)}(\tau_1, \dots, \tau_k)$:

$$\chi_{i, j_1, \dots, j_k}^{(k)}(\omega_{f_1} + \dots + \omega_{f_k}; \omega_{f_1}, \dots, \omega_{f_k}) = \int_0^\infty d\tau_1 \dots \int_0^\infty d\tau_k \chi_{i, j_1, \dots, j_k}^{(k)}(\tau_1, \dots, \tau_k) \exp[i(\omega_{f_1} \tau_1 + \dots + \omega_{f_k} \tau_k)]. \quad (2.6.17)$$

Отметим здесь некоторые общие свойства тензоров нелинейной восприимчивости. Непосредственно из (16) следует *перестановочная симметрия*: можно менять местами любую пару частотных аргументов вместе с соответствующим декартовым индексом, например

$$\chi_{i, j_1, j_2, \dots, j_k}^{(k)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k}; \omega_{f_1}, \omega_{f_2}, \dots, \omega_{f_k}) = \chi_{i, j_2, j_1, \dots, j_k}^{(k)}(\omega_{f_1} + \omega_{f_2} + \dots + \omega_{f_k}; \omega_{f_2}, \omega_{f_1}, \dots, \omega_{f_k}). \quad (2.6.18)$$

Вещественность функций отклика приводит к тому, что изменение знаков всех частот эквивалентно комплексному сопряжению восприимчивости:

$$\chi_{i, j_1, \dots, j_k}^{(k)}(-\omega_{f_1} - \dots - \omega_{f_k}; -\omega_{f_1}, \dots, -\omega_{f_k}) = \chi_{i, j_1, \dots, j_k}^{(k)*}(\omega_{f_1} + \dots + \omega_{f_k}; \omega_{f_1}, \dots, \omega_{f_k}). \quad (2.6.19)$$

Как уже упоминалось, связь между вещественными и мнимыми частями восприимчивости среды, находящейся в отсутствие излучения в термодинамическом равновесии, также определяется соотношениями типа Крамерса – Кронига.

В областях прозрачности нелинейные проницаемости вещественны (что следует из рассмотрения микромоделей с помощью матрицы плотности в отсутствие релаксации, $\gamma_{nm} = 0$). При этом возникает дополнительная симметрия тензоров восприимчивости по индексам, включающая перестановки первого индекса. Эту симметрию нам будет удобней обсудить в следующих главах. Здесь же мы отметим играющую особую роль *пространственную симметрию* аморфных и кристаллических тел. Точнее, имеется в виду симметрия в расположении частиц среды – атомов, ионов и молекул – при статистическом усреднении их положений, флуктуирующем при тепловом движении. Фактор пространственной симметрии был важен и в линейной области при разделении сред на оптические изотропные и одноосные и двухосные кристаллы. Но применительно к феноменологическим нелинейным

восприимчивостям этот фактор особенно актуален, так как его использование позволяет резко сократить число ненулевых и различающихся компонент восприимчивостей.

Пространственная симметрия кристаллов

Здесь мы представим только краткое изложение этого вопроса, отсылая читателя за подробностями, например, к монографии [37]. Под симметрией идеальных кристаллов понимается свойство совмещения решетки составляющих их частиц при параллельных переносах, поворотах, отражениях или части или комбинации этих операций.

Основное свойство идеального кристалла заключается в возможности выделения в нем такой *элементарной ячейки* (параллелепипед, рис. 2.9) с фиксированным расположением частиц в ней, что параллельный перенос ячейки на вектор трансляции также дает элементарную ячейку и применение к элементарной ячейке всех операций трансляции покрывает все пространство. Формирующие кристаллическую решетку частицы не обязательно находятся в узлах элементарной решетки; в частном случае такого совпадения говорят о примитивной ячейке, узлы которой представляют все точки решетки. Для элементарных ячеек приняты следующие обозначения, указывающие на характер расположения частиц в ячейке:

P – примитивная ячейка (в том числе R – ромбоэдр);

C – с центрированными основаниями;

I – объемноцентрированная ячейка;

F – гранецентрированная ячейка.

Вектора трансляции \mathbf{T} связаны с векторами, построенными на ребрах элементарной решетки \mathbf{a} , \mathbf{b} и \mathbf{c} (см. рис. 2.9), соотношением

$$\mathbf{T} = i\mathbf{a} + j\mathbf{b} + k\mathbf{c}, \quad (2.6.20)$$

где i, j и k – целые числа.

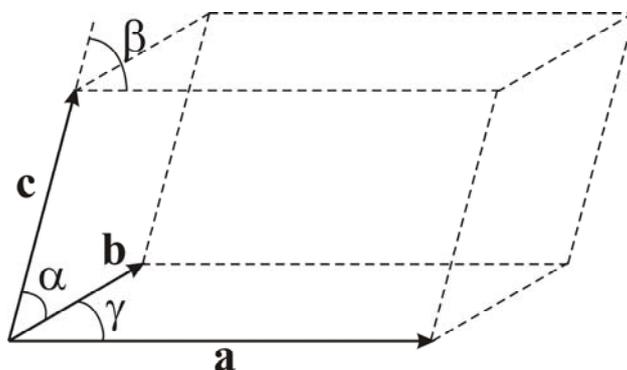


Рис. 2.9. Элементарная ячейка кристалла в виде параллелепипеда с ребрами \mathbf{a} , \mathbf{b} и \mathbf{c} и углами между ними α , β и γ .

В зависимости от соотношений между длинами ребер элементарной ячейки и углами между ними имеется 7 кристаллических систем, см. Табл. 2.1.

Таблица 2.1. Кристаллические системы

Кристаллическая система (типы ячеек)	Соотношение длин ребер	Соотношение углов
Триклинная (P)	$a \neq b \neq c$	$\alpha \neq \beta \neq \gamma$
Моноклинная (P, C)	$a \neq b \neq c$	$\alpha = \gamma = \pi/2 \neq \beta$
Ромбическая (P, C, I, F)	$a \neq b \neq c$	$\alpha = \beta = \gamma = \pi/2$
Тетрагональная (P, I)	$a = b \neq c$	$\alpha = \beta = \gamma = \pi/2$
Тригональная (R)	$a = b = c$	$\alpha = \beta = \gamma < 2\pi/3, \neq \pi/2$
Гексагональная (P)	$a = b \neq c$	$\alpha = \beta = \pi/2, \gamma = 2\pi/3$
Кубическая (P, I, F)	$a = b = c$	$\alpha = \beta = \gamma = \pi/2$

При исключении трансляций сохраняется симметрия *точечных групп* (с наличием неподвижных при операциях симметрии точек), элементами которой служат:

Оси поворота на угол $2\pi/n$, $n = 1, 2, 3, 4, 6$ (случай $n = 1$ отвечает тождественному преобразованию).

Плоскости зеркального отражения, проходящие через точки решетки.

Центр симметрии (инверсия) с совпадением кристаллической структуры при инверсии координат $\mathbf{r} \rightarrow -\mathbf{r}$.

Инверсионно-поворотные оси, когда кристаллическая структура совпадает с исходной после поворота вокруг оси и последующей инверсии.

При операциях симметрии точечных групп кристаллов – поворотах и отражениях – все физические величины (скаляры, векторы и тензоры различного ранга) преобразуются так, что их новые значения равны линейным комбинациям прежних значений с коэффициентами преобразования, определяемыми углами поворота и видом и числом отражений. Естественно, что скаляры при преобразованиях не меняются. Полярные векторы (см. п. 1.2), которые можно трактовать как тензоры первого ранга, при инверсии координат меняют знак. Поэтому при инверсии $\mathbf{r} \rightarrow -\mathbf{r}$ компоненты напряженности электрического поля и поляризованности (обе величины – полярные векторы) меняют знаки:

$$E_i \rightarrow -E_i, \quad P_i \rightarrow -P_i. \quad (2.6.21)$$

Тензоры восприимчивости k -го порядка $\chi_{i,j_1,\dots,j_k}^{(k)}$, число координатных индексов у компонент которых равно $k+1$, обладают рангом $k+1$. Поэтому при инверсии компоненты этих тензоров в общем случае меняются следующим образом:

$$\chi_{i,j_1,\dots,j_k}^{(k)} \rightarrow (-1)^{k+1} \chi_{i,j_1,\dots,j_k}^{(k)}. \quad (2.6.22)$$

Если кристалл обладает симметрией по отношению к инверсии, то его компоненты не должны меняться при этой операции, то есть для них компоненты тензора в левой и правой частях (22) должны совпадать

$$\chi_{i,j_1,\dots,j_k}^{(k)} = (-1)^{k+1} \chi_{i,j_1,\dots,j_k}^{(k)}. \quad (2.6.23)$$

Отсюда следует, что для сред с центром инверсии (они называются *центросимметричными*) все восприимчивости четных порядков равны нулю:

$$\chi_{i,j_1,\dots,j_{2k}}^{(2k)} = 0. \quad (2.6.24)$$

Другие применения симметричного анализа приводятся в следующей части Пособия.

Выше мы исключали из рассмотрения магнитные эффекты; служат они исключением и при анализе симметрии. Это вызвано тем, что напряженность магнитного поля и намагниченность являются аксиальными векторами, или псевдовекторами, не меняющими знака при инверсии координат. Поэтому при включении в разложение (16) статических или медленно меняющихся магнитных полей наряду с напряженностями электрического поля соотношение (24) может нарушаться.

Еще одно замечание связано с не так давно установленным фундаментальным эффектом несохранения четности при слабых взаимодействиях [41, 42]. Вообще говоря, из-за этого эффекта даже в центросимметричных средах должна существовать квадратичная оптическая нелинейность, но ее величина, как показывают оценки [43], чрезвычайно мала.

Фотоэлектрические нелинейности

В этом разделе мы рассмотрим феноменологическое описание отклика среды на оптическое излучение, сопровождающегося генерацией постоянного электрического тока. Для общности мы включим возможность присутствия постоянного однородного электрического поля с напряженностью $\mathbf{E}^{(0)}$. Чтобы отвлечься от эффектов, связанных с неоднородностью поля оптического излучения, мы ограничимся случаем плоской монохроматической волны с частотой ω и волновым вектором \mathbf{k} :

$$\tilde{\mathbf{E}} = \frac{1}{2} \mathbf{E} \exp(i\mathbf{k}\mathbf{r} - i\omega t) + c.c. \quad (2.6.25)$$

Обобщение соотношения (6) для плотности электрического тока \mathbf{j} имеет вид [44]:

$$\begin{aligned} j_i = & \sum_{j=1}^3 \sigma_{ij} E_j^{(0)} + \sum_{j,l=1}^3 \sigma_{ijl} E_j^{(0)} E_l^{(0)} + \sum_{j,l,m=1}^3 \sigma_{ijlm} E_j^{(0)} E_l E_m^* + \\ & + \sum_{j,l,m=1}^3 \chi_{ijlm} k_j E_l E_m^* + \sum_{j,l=1}^3 \beta_{ijl} E_j E_l^* + \dots \end{aligned} \quad (2.6.26)$$

Физический смысл членов в правой части (26) следующий. Первая сумма с тензором второго ранга σ_{ij} описывает линейную проводимость среды (закон Ома). Вторая сумма с тензором третьего ранга σ_{ijl} отвечает квадратичной (по электростатическому полю) электропроводности, то есть нелинейной поправке к закону Ома. Третья сумма с тензором четвертого ранга σ_{ijlm} описывает анизотропную фотопроводимость среды, пропорциональную интенсивности оптического излучения. Четвертая и пятая суммы не включают электростатического поля, то есть сохраняются при $\mathbf{E}^{(0)} = 0$. Сумма с тензором четвертого ранга χ_{ijlm} , пропорциональная компонентам волнового вектора \mathbf{k} , описывает эффект светового увлечения [45]. Последняя из выписанных сумм с фотогальваническим тензором третьего ранга β_{ijl} представляет фотогальванический эффект – генерацию постоянного тока светом в отсутствие внешних статических полей, сохраняющуюся в пренебрежении импульсом фотонов ($\hbar\mathbf{k} \rightarrow 0$).

Плотность тока \mathbf{j} , напряженности статического $\mathbf{E}^{(0)}$ и высокочастотного \mathbf{E} электрического поля и волновой вектор \mathbf{k} являются полярными векторами (тензорами первого ранга), при инверсии координат они меняют знак. Поэтому аналогично ситуации в предыдущем разделе можно заключить, что в центросимметричной среде тензоры квадратичной электропроводности и фотогальванического эффекта обращаются в нуль, $\sigma_{ijl} = 0$, $\beta_{ijl} = 0$. (2.6.27)

Соответственно, эти эффекты возможны только в нецентросимметричных средах.

Фотогальванический тензор третьего ранга совпадает по форме с обсуждавшимся выше тензором, описывающим оптическое выпрямление. Существенное физическое отличие этих эффектов связано с тем, что генерация тока при фотогальваническом эффекте связана с диссипацией энергии и исчезает в прозрачных средах. Оптическое же выпрямление отвечает генерации статической поляризуемости среды, реализующейся и в прозрачных средах. Результаты теоретических и экспериментальных исследований фотогальванического эффекта приведены в монографии [44].

В нецентросимметричных средах возможны и другие родственные эффекты генерации потоков оптическим излучением. Так в однородной нецентросимметричной среде может реализовываться *фототермический эффект* генерации потока тепла \mathbf{w} в отсутствие температурных градиентов, который описывается сходным выражением

$$w_i = T_{ijl} E_j E_l^*. \quad (2.6.28)$$

Однако оценки показывают, что, в отличие от фотогальванического эффекта, в реальных условиях фототермический эффект столь слаб, что его сложно обнаружить экспериментально [44].

2.7. Нелинейность и дисперсия электрон-позитронного вакуума

Квантовоэлектродинамический эффект поляризации вакуума можно интерпретировать как раскачку сильным электромагнитным полем эффективных диполей, состоящих из виртуальных электронно-позитронных пар вакуума. Этот эффект нарушает линейность уравнений Максвелла в вакууме [46], что отвечает разнообразным нелинейно-оптическим явлениям, которые могут наблюдаться как в астрофизических условиях, так и в лабораторных экспериментах с использованием мощных лазерных установок [47-50]. Интересно, что теория Гейзенберга – Эйлера этого эффекта приводит к уравнениям Максвелла, совпадающим по форме с уравнениями нелинейной электродинамики сплошных сред в отсутствие дисперсии [46]. Тем самым вакуум уподобляется прозрачной среде с нерезонансной слабой нелинейностью. Более точно, дисперсия слаба вдали от резонанса для излучения с частотами $\omega \ll \omega_{cr}$, где $\omega_{cr} = mc^2 / 2\hbar$, m – масса электрона, $\omega_{cr} / 2\pi = 6.2 \cdot 10^{18}$ Гц. Отвечающее рождению электрон-позитронных пар поглощение излучения в вакууме экспоненциально мало для полей с докритическими напряженностями электрического поля, $E \ll E_{cr} = m^2 c^3 / e\hbar = 4.4 \cdot 10^{13}$ ед. СГСЭ.

Вместе с тем локально слабые эффекты нелинейности и дисперсии могут накапливаться на длине трассы распространения излучения, что и обосновывает важность их учета. Для включения в рассмотрение даже слабой дисперсии необходим выход за рамки теории Гейзенберга – Эйлера, развитой для статических однородных полей. Такое обобщение теории содержится в [51, 52]. Далее мы приведем соответствующие уравнения Максвелла и обсудим нелинейно-оптические свойства электрон-позитронного вакуума, следуя [49].

Ниже в этом разделе используется система единиц, в которой скорость света $c = 1$, постоянная Планка $\hbar = 1$, а квадрат заряда электрона e совпадает с постоянной тонкой структуры: $e^2 = 1/137$. В таких единицах условия применимости теории имеют вид

$$\omega \ll m, \quad k \ll m, \quad E \ll E_{cr}. \quad (2.7.1)$$

Здесь ω и k – характерные частота и волновое число излучения, а критическое значение напряженности рождения электрон-позитронных пар в принятой системе единиц записывается в форме $E_{cr} = m^2 / e$.

«Дифференциальные» уравнения Максвелла для напряженностей электрического $\tilde{\mathbf{E}}$ и магнитного $\tilde{\mathbf{B}}$ полей и электрической $\tilde{\mathbf{D}}$ и магнитной $\tilde{\mathbf{H}}$ индукций записываются в обычном для электродинамики сплошных сред виде (1.2.29)-(1.2.32) (в отсутствие свободных зарядов и токов):

$$\begin{aligned} \operatorname{div} \tilde{\mathbf{B}} = 0, \quad \operatorname{rot} \tilde{\mathbf{E}} = -\frac{\partial \tilde{\mathbf{B}}}{\partial t}, \\ \operatorname{rot} \tilde{\mathbf{H}} = \frac{\partial \tilde{\mathbf{D}}}{\partial t}, \quad \operatorname{div} \tilde{\mathbf{D}} = 0. \end{aligned} \quad (2.7.2)$$

Индукции связаны с электрической поляризованностью $\tilde{\mathbf{P}}$ и намагниченностью $\tilde{\mathbf{M}}$ также обычными соотношениями (1.2.28)

$$\tilde{\mathbf{D}} = \tilde{\mathbf{E}} + 4\pi\tilde{\mathbf{P}}, \quad \tilde{\mathbf{H}} = \tilde{\mathbf{B}} - 4\pi\tilde{\mathbf{M}}. \quad (2.7.3)$$

Нелинейность и дисперсия вводятся материальными уравнениями, которые в низшем приближении по этим факторам имеют вид

$$\tilde{\mathbf{P}} = \tilde{\mathbf{P}}_{HE}^{(3)} - 6g\Box\tilde{\mathbf{E}}, \quad \tilde{\mathbf{M}} = \tilde{\mathbf{M}}_{HE}^{(3)} + 6g\Box\tilde{\mathbf{B}}, \quad (2.7.4)$$

где кубичные поляризованности теории Гейзенберга – Эйлера

$$\tilde{\mathbf{P}}_{HE}^{(3)} = \frac{e^4}{180\pi^2 m^4} (-4F\tilde{\mathbf{E}} + 7G\tilde{\mathbf{B}}), \quad \tilde{\mathbf{M}}_{HE}^{(3)} = \frac{e^4}{180\pi^2 m^4} (4F\tilde{\mathbf{B}} + 7G\tilde{\mathbf{E}}), \quad (2.7.5)$$

параметр дисперсии

$$g = \frac{e^2}{360\pi m^2}, \quad (2.7.6)$$

оператор Даламбера \Box связан с оператором Лапласа Δ соотношением

$$\Box = \frac{\partial^2}{\partial t^2} - \Delta \quad (2.7.7)$$

и введено обозначение инвариантов поля (величин, сохраняющихся при преобразованиях Лоренца)

$$F = \frac{1}{2}(\tilde{\mathbf{B}}^2 - \tilde{\mathbf{E}}^2), \quad G = (\tilde{\mathbf{E}}, \tilde{\mathbf{B}}). \quad (2.7.8)$$

Нелинейности более высоких порядков (нечетных, так как вакуум изотропен) также выражаются через инварианты F и G . Отметим, что материальные уравнения (4) включают и пространственную, и временную (частотную) дисперсию, характеризуемые одной и той же постоянной g (ввиду релятивистской инвариантности задачи). По той же причине электрические и магнитные величины входят в уравнения вполне равноправно. Материальные уравнения не содержат каких-либо параметров кроме фундаментальных постоянных (масса и заряд электрона, скорость света в вакууме и постоянная Планка).

Имеется еще одна интересная особенность вакуума как нелинейно-оптической среды. Дело в том, что для плоской монохроматической волны оба инварианта F и G обращаются в нуль, и вместе с ними полностью исчезают нелинейность и дисперсия вакуума (во всех порядках теории возмущений). Другими словами, плоская монохроматическая волна служит точным решением нелинейных уравнений Максвелла (2)-(5), в отличие от «обычных» нелинейных сред, в которых происходит генерация высших гармоник. Такое положение имеет место и в теории Гейзенберга –

Эйлера, то есть в пренебрежении дисперсией вакуума. Кроме того, хотя формально дисперсионные члены в (4) линейны по напряженностям поля, они исчезают для слабых полей, удовлетворяющих обычному дисперсионному соотношению $k^2 = \omega^2$. Для наблюдения проявлений дисперсии необходимо нарушить указанное соотношение. Это можно сделать за счет нелинейности вакуума при взаимодействии нескольких плоских электромагнитных волн, при наличии разреженного вещества или при включении сильных статических электрического или магнитного поля. При этом вакуум становится анизотропным, и оказываются возможными разнообразные нелинейно-оптические эффекты, которые можно наблюдать при уже достигнутом уровне интенсивностей лазерного излучения [47-50].

Литература к главе 2

1. Д.Н. Клышко. Физические основы квантовой электроники. М., Наука, 1986.
2. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Электродинамика сплошных сред. М., Физматлит, 1982.
3. Н.Н. Розанов. Опт. спектр. 2003. Т. 94. С. 439.
4. И.Г. Малкин. Некоторые задачи теории нелинейных колебаний. М., Гостехиздат, 1956.
5. А.Д. Морозов. Диф. уравнения. 1976. Т. 12. С. 241.
6. В.Т. Платоненко, Р.В. Хохлов. ЖЭТФ 1964. Т. 46. С. 555.
7. В.М. Агранович, В.Л. Гинзбург. Кристаллооптика с учетом пространственной дисперсии и теория экситонов. М., Наука, 1979.
8. J.J. Hopfield, D.J. Thomas. Phys. Rev. 1963. Vol. 132. P. 563.
9. М. Борн, Э. Вольф. Основы оптики. М., Наука, 1970.
10. А.М. Бонч-Бруевич, Т.А. Вартанян, С.Г. Пржибельский. Оптические резонансные свойства металлических наночастиц. В сб. «Оптика наноструктур» под ред. А.В. Федорова, СПб, Недра, 2005, с. 275-325.
11. А.А. Zharov, I.V. Shadrivov, Y. Kivshar. Phys. Rev. Lett. 2003. Vol. 91. 037401.
12. Г.Б. Дейнека. Опт. спектр. 2005. Т. 98. С. 229.
13. M. Veithen, X. Gonze, Ph. Ghosez. Phys. Rev. B Vol. 71. 125107 (2005).
14. S. Sen, S. Chakrabarti. Phys. Rev. B. 2006. Vol. 74. 205435.
15. S. Suchara, T. Konishi, S. Inoue. Phys. Rev. B. 2006. Vol. 73. 092203.
16. E. Roman et al. Phys. Rev. B. 2006. Vol. 74. 245204.
17. A.H. Reshak, S. Auluck, I.V. Kityk. Phys. Rev. B. 2007. Vol. 75. 245120.
18. С.Г. Раутиан, Г.И. Смирнов, А.М. Шалагин. Нелинейные резонансы в спектрах атомов и молекул. Новосибирск, Наука, 1979.
19. Н.Б. Делоне, В.П. Крайнов. Основы нелинейной оптики атомарных газов. М., Наука, 1986.

20. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Квантовая механика. Нерелятивистская теория. М., Наука, 1989.
21. А.С. Давыдов. Квантовая механика. М., Физматгиз, 1963.
22. В.А. Коварский. Многофотонные переходы. Кишинев, изд. «Штиинца», 1974.
23. Л.П. Питаевский. УФН. 2006. Т. 176. С. 345.
24. M. Richard et al. Phys. Rev. B. 2005. Vol. 72. 201301(R).
25. Н.Н. Розанов, В.А. Смирнов. Письма в ЖЭТФ. 2005. Т. 82. С. 27.
26. Л.В. Келдыш. В сб. Проблемы теоретической физики, М., Наука, 1972, с. 433.
27. S.A. Moskalenko, D.W. Snoke. Bose-Einstein condensation of excitons and biexcitons and coherent nonlinear optics with excitons. Cambridge Univ. Press, 2000.
28. В.М. Файн. Фотоны и нелинейные среды. М., «Сов. Радио», 1972.
29. К.В. Гардинер. Стохастические методы в естественных науках. М., Мир, 1986.
30. Н.Н. Розанов. Оптическая бистабильность и гистерезис в распределенных нелинейных системах. М., Наука, 1997.
31. V. Malyshev, P. Moreno. Phys. Rev. A. 1996. Vol. 53. P. 416.
32. И.Н. Бронштейн, К.А. Семендяев. Справочник по математике. М., Наука, 1967.
33. О.В. Константинов, В.И. Перель. ЖЭТФ. 1960. Т. 39. С. 197.
34. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Статистическая физика. М., Наука, 1989.
35. И.Р. Шен. Принципы нелинейной оптики. М., Физматлит, 1989.
36. R.W. Boyd. Nonlinear Optics. San Diego, Acad. Press, 1992.
37. Ч. Киттель. Введение в физику твердого тела. М., Физматлит, 1963.
38. В.П. Силин, А.А. Рухадзе. Электромагнитные свойства плазмы и плазмоподобных сред. М., Госатомиздат, 1961.
39. Н.Н. Розанов, Г.Б. Сочилин. УФН. 2006. Т. 176. С. 421.
40. М.Б. Виноградова, О.В. Руденко, А.П. Сухоруков. Теория волн. М., Наука, 1990.
41. T.D. Lee, C.N. Yang. Phys. Rev. 1956. Vol. 104. P. 254.
42. C.S. Wu, E. Ambler, R. Hayward, D. Happens, R. Hudson. Phys. Rev. 1957. Vol. 105. P. 1413; Vol. 106. P. 1361.
43. Е.Л. Альтшулер, Е.Л. Ивченко, А.И. Москалев, Г.Е. Пикус. ЖЭТФ. 1983. Т. 85. С. 349.
44. Б.И. Стурман, В.М. Фридкин. Фотогальванический эффект в средах без центра симметрии и родственные явления. М., Наука, 1992.
45. С.М. Рывкин, И.Д. Ярошевский. В сб. «Проблемы современной физики». Л., Наука, 1980.
46. В.Б. Берестецкий, Е.М. Лифшиц, Л.П. Питаевский. Квантовая электродинамика. М., Наука, 1989.

47. Е.Б. Александров, А.А. Ансельм, А.Н. Москалев. ЖЭТФ. 1985. Т. 89. С. 1181.
48. Н.Н. Розанов. ЖЭТФ. 1993. Т. 103. № 6. С. 1996.
49. Н.Н. Розанов. ЖЭТФ 1998. Т. 113. С. 513.
50. M. Soljasic, M. Segev. Phys. Rev. A. 2000. Vol. 62. 043817.
51. С.Г. Мамаев, В.М. Мостепаненко, М.И. Эйдес. Ядерная физика. 1981. Т. 33. С. 1675.
52. А.А. Гриб, С.Г. Мамаев, В.М. Мостепаненко. Вакуумные квантовые эффекты в сильных полях. М., Энергоатомиздат, 1988.

В 2007 году СПбГУ ИТМО стал победителем конкурса инновационных образовательных программ вузов России на 2007–2008 годы. Реализация инновационной образовательной программы «Инновационная система подготовки специалистов нового поколения в области информационных и оптических технологий» позволит выйти на качественно новый уровень подготовки выпускников и удовлетворить возрастающий спрос на специалистов в информационной, оптической и других высокотехнологичных отраслях экономики.

КАФЕДРА ФОТОНИКИ И ОПТОИНФОРМАТИКИ

Кафедра "Фотоника и оптоинформатика" была создана летом 2002 года. Одной из ее важнейших задач является организация учебного процесса и подготовка специалистов по оптоинформатике – стремительно развивающейся новой области науки и техники, в которой разрабатываются оптические технологии сверхбыстрой передачи, обработки и записи информации, создаются быстродействующие оптические компьютеры и системы искусственного интеллекта. Разработка таких оптических информационно-телекоммуникационных технологий, представляющих собой информационные технологии нового поколения, является приоритетным направлением развития российской науки, техники и технологий.

В рамках образовательного направления 200600 «Фотоника и оптоинформатика» студентам читаются лекционные курсы по оптической физике, теории информации и кодирования, архитектуре вычислительных систем, технологии программирования, цифровым оптическим вычислениям, оптическим технологиям искусственного интеллекта, голографическим системам записи информации и другим актуальным проблемам оптоинформатики, а также по квантовой информатике. Эти лекционные курсы поддержаны эксклюзивными учебно-научными экспериментальными практикумами.

Среди научных подразделений кафедры – научно-образовательный Центр фемтосекундной оптики и фемтотехнологий, лаборатория компьютерного моделирования и параллельных вычислений, проблемная Лаборатория волновых процессов, основная задача которой – организация научного руководства студентами и аспирантами молодежной научной ассоциации «Оптика – XXI век».

Среди студентов и аспирантов кафедры – стипендиаты Президента и Правительства Российской Федерации, победители конкурсов научных работ, проводимых Российской Академией наук, крупнейшими мировыми научными обществами, такими как INTAS (Фонд научно-исследовательских работ Европейского сообщества), SPIE (Международное общество инженеров-оптиков), CRDF (Американский фонд гражданских исследований и развития), OSA (Оптическое общество Америки).